

**Die Bestimmung laminarer
Flammenfrontgeschwindigkeiten für kritische
Prozeßgase in Kohlevergasungsanlagen**

**Der Technischen Fakultät der
Universität Erlangen-Nürnberg**

**zur Erlangung des Grades
DOKTOR-INGENIEUR**

**vorgelegt von
Gerhard Schmidt**

Erlangen 1984

1985

1985 # 177

DIE BESTIMMUNG LAMINARER FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN

FÜR KRITISCHE PROZESSGASE IN KOHLEVERGASUNGSANLAGEN

Der Technischen Fakultät der
Universität Erlangen-Nürnberg

zur Erlangung des Grades

D O K T O R - I N G E N I E U R

vorgelegt von

Gerhard Schmidt

Erlangen 1984

Als Dissertation genehmigt von
der Technischen Fakultät
der Universität Erlangen-Nürnberg

Tag der Einreichung: 29.11.1984

Tag der Promotion : 25.02.1985

Dekan : Prof. Dipl.-Ing. G. Vetter

Berichterstatter: Prof. Dr. H. Hofmann

Prof. Dr. S. Peter

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

	<u>Seite</u>
1. <u>EINFÜHRUNG</u>	1
1.1 Aufgabenstellung	1
1.2 Grundbegriffe und Definitionen	2
1.3 Zusammenhang zwischen Flammengeschwindigkeit und anderen sicherheitstechnischen Kenngrößen	7
2. <u>THEORIE DER LAMINAREN FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEIT</u>	9
2.1 Flammgleichungen	9
2.2 Lösungsverfahren (Literaturübersicht)	13
2.2.1 Klassische Lösungsverfahren	13
2.2.1.1 Theorie der Wärmeleitung	14
2.2.1.2 Diffusionstheorie	17
2.2.2 Moderne Lösungsverfahren, Verfahren von Warnatz	18
2.2.2.1 Grundgleichungen	19
2.2.2.2 Rechengang	20
2.2.2.3 Reaktionsmechanismen	22
2.2.2.4 Ergebnisse und deren sicherheits- technische Bedeutung	23
3. <u>AUSWAHL DER MESSMETHODE</u>	25
3.1 Statische Methoden	25
3.2 Dynamische Methoden	26
4. <u>BESCHREIBUNG DER GEWÄHLTEN MESSMETHODE</u>	27
4.1 Gesamtaufbau der Apparatur	28
4.2 Dosierung der Einsatzstoffe	31
4.3 Düsenbrenner	32
4.4 Meßeinrichtung zur Bestimmung der Gasgeschwindig- keiten	34
4.4.1 Prinzip der Laser-Doppler-Anemometrie	35
4.4.2 Beschreibung des LDA-Systems	36
4.4.3 Erzeugung von Streupartikeln	38

	<u>Seite</u>
4.5 Meßeinrichtung zur Bestimmung der Verbrennungszone ...	39
4.5.1 Prinzip des schlierenoptischen Verfahrens	39
4.5.2 Beschreibung der schlierenoptischen Einheit	40
5. <u>MESSERGEBNISSE</u>	43
5.1 Vorversuche zur Bestimmung von Strömungsgeschwindig- keiten	43
5.1.1 Geschwindigkeitsspektrum innerhalb eines Meß- volumens	43
5.1.2 Lokale Verteilung der Gasgeschwindigkeiten im ungezündeten Freistrahle	46
5.1.3 Lokale Verteilung der Gasgeschwindigkeiten im Verbrennungskegel	48
5.2 Vorversuche zur Bestimmung der Brennfläche	51
5.3 Folgerungen für die Versuchsdurchführung	55
5.4 Flammengeschwindigkeiten binärer Brenngas/Luft-Ge- mische	56
5.4.1 Das System Methan/Luft	57
5.4.2 Das System Wasserstoff/Luft	58
5.4.3 Das System Kohlenmonoxid/Luft	60
5.5 Flammengeschwindigkeiten polynärer Brenngas/Luft-Ge- mische	60
5.5.1 Das System Methan/Wasserstoff/Luft	60
5.5.2 Prozeßgase in Kohlevergasungsanlagen	66
5.6 Zusammenstellung wichtiger Meßwerte	77
5.7 Einflußgrößen auf die Flammengeschwindigkeit	80
5.7.1 Einfluß der Brenngaskonzentration in Luft	80
5.7.2 Einfluß der Brenngaszusammensetzung	81
5.7.3 Einfluß der Vorwärmtemperatur	87
5.7.4 Einfluß von Inertgasen	89
6. <u>ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK</u>	94
7. <u>SYMBOLVERZEICHNIS</u>	96
8. <u>LITERATURVERZEICHNIS</u>	99

1. EINFÜHRUNG

Die Beurteilung von Explosionsgefahren beim Umgang mit brennbaren Gasen und Flüssigkeiten erfolgt anhand von sicherheitstechnischen Kenngrößen wie Explosionsgrenzen, Mindestzündenergien und Zündtemperaturen. Darüber hinaus braucht man Kenntnisse über Flammenfortpflanzungsgeschwindigkeiten, um die Heftigkeit bzw. die Folgen einer sich ausbreitenden Explosionswelle abschätzen zu können und Sicherheitseinrichtungen richtig zu dimensionieren.

1.1 Aufgabenstellung

Ausgangspunkt für die vorliegende Arbeit waren Überlegungen zur Verwendung von Kernenergie in Kohlevergasungsanlagen, wie sie im Rahmen des sogenannten "PNP-Sicherheitssofortprogrammes" unter Koordination der Interatom GmbH und unter Mitwirkung mehrerer Fachinstitute angestellt wurden /1/. Hier bestanden noch Unklarheiten über den notwendigen Schutz des atomaren Anlagenteils gegen unvorhersehbare Zündungen von Prozeßgasgemischen der zugehörigen Kohlevergasungsanlage.

Diese Prozeßgase haben wechselnde Zusammensetzung mit den brennbaren Komponenten Methan, Kohlenmonoxid und Wasserstoff und den Inertkomponenten Stickstoff, Kohlendioxid und Wasserdampf. Sie kommen im Temperaturbereich von 300 K bis 1100 K und im Druckbereich von 1 bar bis 100 bar vor.

Eine umfangreiche Literaturstudie über Explosionsgrenzen und Flammenfrontgeschwindigkeiten derartiger Gemische /2/ ergab keine hinreichend sichere Daten für die weitere theoretische Behandlung der Druckausbreitung. Ziel der vorliegenden Arbeit war daher die experimentelle Bestimmung der Flammengeschwindigkeiten durch

Variation der Einflußgrößen Temperatur, Gemischkonzentration und Gemischzusammensetzung für Brenngas/Luft- bzw. polynäre Brenngas/Inertgas/Luft-Gemische.

Weitere Untersuchungen z.B. über Gaswolkenbildung, Strömungsverhältnisse und Druckwellenbelastung übernehmen andere Teilnehmer des PNP-Sicherheitssofortprogrammes /7/.

1.2. Grundbegriffe und Definitionen

Liegt die Konzentration eines Brenngases in Luft oder einem anderen Oxidationsmittel innerhalb der Explosionsgrenzen, so kann nach Wagner /3/ eine Flamme als eine in einer dünnen Zone ablaufende exotherme Reaktion bezeichnet werden, die sich mit einer gewissen Geschwindigkeit in ein reaktionsfähiges Gasgemisch fort-pflanzt. Man spricht in diesem Fall von einer Vormischflamme.

Der Bereich, in dem das kalte Gemisch aufgeheizt und zur Reaktion gebracht wird, wird als Flammenfront bezeichnet /4/.

Die Flammengeschwindigkeit Λ ist dann definiert als die Geschwindigkeit, mit der sich eine Flammenfront relativ zu dem (kalten) Brenngas/Oxidans-Gemisch bewegt. Ihre Richtung verläuft senkrecht zur Brennfläche.

Innerhalb der Flammenfront ändern sich die Parameter, die den Zustand des Systems beschreiben, z.B. Temperatur und Spezieskonzentrationen.

Für das Verständnis der in Kapitel 5 beschriebenen Meßmethode ist es wichtig, die Dicke der Flammenfront, insbesondere der Aufheizzone, ungefähr abschätzen zu können. Dazu soll im folgenden Abschnitt der Temperaturverlauf in einer Vormischflamme betrachtet werden.

Stellt man sich eine eindimensionale Flamme ortsfest bezüglich einer Koordinate x vor, so kann der Temperaturverlauf wie in Abbildung 1 schematisch dargestellt werden.

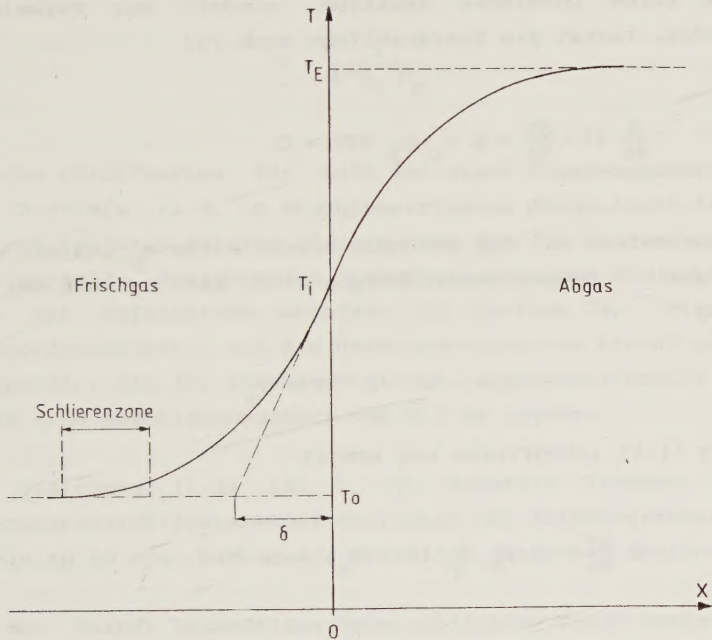


Abb. 1: Schematischer Temperaturverlauf in der Flammenfront

Im unverbrannten Frischgas, weit vor der Flamme, beträgt die Temperatur $T = T_0$. Sie steigt dann zu Beginn der Flammenfront steil an, durchläuft einen Wendepunkt bei $T = T_i$ und nähert sich schließlich der Flammenendtemperatur T_E . Die Ortskoordinate wird

zu $x = 0$ bei $T = T_i$ festgelegt. Die Schlierenzone auf der Seite des Frischgases ist, wie in Kapitel 4.5.1 noch gezeigt wird, für die Meßtechnik von besonderer Bedeutung.

Das Gebiet $x < 0$ wird allgemein als Aufheizzone, das Gebiet $x > 0$ als Reaktionszone bezeichnet. Setzt man voraus, daß in der Aufheizzone keine chemische Reaktion, sondern nur Wärmeleitung stattfindet, lautet die Energiebilanz nach /5/

$$\frac{d}{dx} (\lambda \cdot \frac{dT}{dx} - \Lambda \rho_O c_p dT) = 0 \quad (1.1)$$

Nimmt man weiter an, daß die spezifische Wärme c_p und die Wärmeleitfähigkeit λ temperaturunabhängig sind, kann man mit der Randbedingung

$$x = -\infty : T = T_O$$

Gleichung (1.1) integrieren und erhält

$$\lambda \frac{dT}{dx} - \Lambda \rho_O c_p (T - T_O) = 0 \quad (1.2)$$

Eine weitere Randbedingung ist

$$x = 0 : T = T_i$$

Man erhält dann den Temperaturverlauf

$$T = T_O + \exp\left(-\frac{\Lambda \rho_O c_p}{\lambda} \cdot x\right) \cdot (T_i - T_O) \quad (1.3)$$

Gleichung (1.3) gilt auch dann noch qualitativ, wenn die Voraussetzungen c_p , $\lambda \neq f(T)$ nicht erfüllt sind /3/.

Durch den Schnittpunkt der Wendetangente mit der Gerade $T = T_0$ in Abbildung 1 kann ein Aufheizzone-Dickemaß δ definiert werden. Mit Gleichung (1.2) folgt

$$\delta = \frac{\lambda}{\Lambda \rho_0 c_p} \quad (1.4)$$

Mit den Stoffwerten für Luft und einer Flammengeschwindigkeit $\Lambda = 0.4 \text{ m/s}$ (z.B. in stöchiometrischen Methan/Luft-Gemischen) wird von Hoffmann-Berling /4/ ein Wert von $\delta = 0,14 \text{ mm}$ errechnet. Experimentelle Bestimmungen haben ergeben, daß die tatsächliche Dicke der Aufheizzone ungefähr 3δ beträgt /4/. Dies stimmt größenordnungsmäßig mit den Untersuchungen von Franze und Wagner /3/ überein, die für stöchiometrische Kohlenwasserstoff/ Luft-Gemische eine Aufheizzonendicke von $0,3 \text{ mm}$ angeben.

Nach Gleichung (1.4) ist $\delta \sim \frac{1}{\Lambda}$. Schnelle Flammen, z.B. bei Kohlenwasserstoff/Sauerstoff-Gemischen mit Flammengeschwindigkeiten bis zu 10 m/s , haben also erheblich dünnere Aufheizzone.

Bei den bisher behandelten Vormischflammen wurde vorausgesetzt, daß Brenngas und Oxidationsmittel vor der Reaktion bzw. vor Eintritt in die Reaktionszone ideal, d.h. molekular gemischt sind. Dagegen wird in einer Diffusionsflamme die eigentliche Reaktion durch Misch- bzw. Diffusionsvorgänge zwischen Brenngas und Oxidans überlagert. Bei der reinen Diffusionsflamme liegen beide Reaktionsteilnehmer durch die Verbrennungszone getrennt vor. Dies ist z.B. bei einer normalen Kerzenflamme der Fall, bei der lediglich die umgebende Luft als Sauerstoffträger zur Verfügung steht.

Im bereits erwähnten PNP-Sicherheitssofortprogramm wurden Störfälle angenommen, bei denen nach einem möglichen Behälter- oder Rohrleitungsbruch beträchtliche Mengen an Prozeßgasen freigesetzt werden, die mit Luft vermischt explosionsfähig sind. Da die Auswirkungen derartiger Explosionen abgeschätzt werden sollten, wurde für die Untersuchungen in der vorliegenden Arbeit von den bisher diskutierten Flammenformen die Vormischflamme ausgewählt und besonderen Wert auf die Ermittlung maximaler Flammengeschwindigkeiten gelegt. Der Begriff "Vormischflamme" wurde allerdings insofern modifiziert, als Diffusionsvorgänge mit der umgebenden Luft, die besonders bei brennstoffreichen Gemischen eine Rolle spielen, zugelassen waren.

Bei der Ableitung des Temperaturprofils einer Vormischflamme (Gleichung 1.1 bis 1.4) wurde die Flammenfront als ortsfest angesehen. Dies ist strenggenommen nur bei einer laminaren Flamme möglich, bei der sich die Flammenfront laminar in das zündfähige Gemisch ausbreitet bzw. das Frischgas die Flammenfront laminar anströmt. Dagegen laufen die meisten technischen Verbrennungsvorgänge in Form von turbulenten Flammen ab. In einer turbulenten Flamme fluktuiert die Flammenfront um eine mittlere Lage /4/. Die turbulente Flammengeschwindigkeit ist dann die Relativgeschwindigkeit zwischen dieser mittleren Lage und dem Frischgasgemisch. Sie beträgt ein Vielfaches der laminaren und wird zusätzlich von der Turbulenzintensität und -struktur beeinflusst.

Ein früher praktiziertes Verfahren zur Berechnung der turbulenten Flammengeschwindigkeit war die Einführung eines von der Reynolds-Zahl abhängigen Turbulenzfaktors, mit der die laminare Flammengeschwindigkeit multipliziert werden mußte /6/. Moderne theoretische und experimentelle Arbeiten knüpfen dagegen an Hypothesen an, nach denen die instationäre Struktur einer turbulenten Flamme durch laminare Einzelflammenfronten gekennzeichnet ist, die sich zu einer stark gefalteten Flammenfront zusammensetzen /4/. Auf jeden Fall aber muß die laminare Flammengeschwindigkeit bekannt sein. Dies war Ziel der vorliegenden Untersuchungen.

1.3 Zusammenhang zwischen Flammengeschwindigkeit und anderen sicherheitstechnischen Kenngrößen

Ist die Flammengeschwindigkeit bekannt, so können damit auch andere sicherheitstechnische Kenngrößen abgeschätzt werden. Im einleitenden Kapitel wurde bereits auf den Zusammenhang zwischen Flammengeschwindigkeit und Druckwelle hingewiesen. Bei Versuchen im Explosionsautoklaven ist der maximale Druckanstieg $(dp/dt)_{\max}$ proportional zur Flammengeschwindigkeit Λ . Die Proportionalitätskonstante hängt sowohl von den Stoffdaten als auch von den äußeren Versuchsbedingungen ab. Nach Lewis und von Elbe /9/ gilt für adiabate Betriebsweise in einem kugelförmigen Gefäß mit dem Innendurchmesser d

$$\frac{dp}{dt} = \frac{6 \Lambda}{d} (p_E - p_O) \left(1 - \frac{p_E - p}{p_E - p_O} \left(\frac{p_O}{p}\right)^{1/\kappa}\right)^{2/3} \left(\frac{p}{p_O}\right)^{1/\kappa} \quad (1.5)$$

Ist die Flammengeschwindigkeit größer als die Schallgeschwindigkeit, geht die Explosion in eine Detonation über.

Eine weitere sicherheitstechnisch relevante Kenngröße ist der Löschabstand s , d.h. die maximale Weite eines Spaltes, durch den ein Flammendurchschlag gerade nicht mehr möglich ist. Der Löschabstand läßt sich aus dem in Kapitel 1.2 beschriebenen Temperaturverlauf in der Aufheizzone ableiten. Dort wurde in Gleichung (1.4) eine Größe δ definiert, welche die Dicke der Aufheizzone charakterisiert. Wird das Wärmegleichgewicht innerhalb dieser Zone - etwa durch Wärmeableitung in einem Spalt endlicher Weite - gestört, wird die zur Flammenfortpflanzung nötige Mindesttemperatur nicht erreicht und die Flamme erlischt. Es liegt also nahe, $s \sim \delta$ bzw.

$$s = \frac{\lambda}{\Lambda \cdot c_p \rho_O} \cdot \text{const} \quad (1.6)$$

zu setzen.

Dimensionsanalytische Betrachtungen von Mayer /8/ zeigen, daß in einer Peclet-Zahl die Größen Λ und s kombiniert werden können:

$$Pe = \frac{\Lambda \cdot s \cdot c \cdot \rho_0}{\lambda} \quad (1.7)$$

Nach Kalkert und Schecker /9/ liegt für eine Vielzahl von brennbaren Stoffen (einschließlich Stäuben) der Wert dieser nach Gleichung (1.7) gebildeten Kennzahl in einem relativ engen Bereich, $30 < Pe < 50$. Es ist also möglich, bei Kenntnis der Flammgeschwindigkeit Λ mit einer mittleren Peclet-Zahl den Löschabstand s größenordnungsmäßig zu bestimmen. Abweichungen von dieser Regel ergeben sich allerdings bei Zusatz von inerten Gasen.

Ersetzt man s in Gleichung (1.7) durch eine ebenfalls von Kalkert und Schecker angegebene Beziehung zwischen s und der Mindestzündenergie W

$$\lg W = 2.19 \lg s - 1.18, \quad (1.8)$$

so erhält man:

$$\lg W = 5.26 \pm 0.2 - 2.19 \lg \Lambda \quad (1.9)$$

(s in mm; W in mJ; Λ in mm/s)

Gleichung (1.9) stellt einen Zusammenhang zwischen Mindestzündenergie und Flammengeschwindigkeit her und kann zur Abschätzung noch unbekannter Kenngrößen verwendet werden.

2. THEORIE DER LAMINAREN FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEIT

2.1 Flammengleichungen

Theoretische Ansätze zur Berechnung von Flammengeschwindigkeiten lassen sich aus den Erhaltungssätzen für Masse, Impuls und Energie ableiten.

Ähnlich wie in Kapitel 1.2 beschränkt man sich im allgemeinen auf den Fall einer ebenen, d.h. eindimensionalen, stationären Flamme. Einflüsse durch Wärmeableitung der Brennerwand oder durch Krümmung der Brennfläche können daher nicht berücksichtigt werden.

Die folgenden Ableitungen schließen sich der Vorgehensweise von Wagner /3/ bzw. Hirschfelder /10/ an.

Ist v die mittlere Gasgeschwindigkeit und j die Massenflußdichte, dann folgt aus der Kontinuitätsgleichung

$$\rho v = j = \text{const} \quad (2.1)$$

Mit der Konzentration c_i und der Diffusionsgeschwindigkeit v_{Di} einer Komponente i gilt für die zeitliche Konzentrationsänderung längs der Ortskoordinate x bei konstantem Volumen

$$r_i = \frac{dc_i}{dt} = \frac{d}{dx} (c_i \cdot (v + v_{Di})) \quad (2.2)$$

Substituiert man mit der Molmasse M

$$\frac{M_i c_i}{j} (v + v_{Di}) = G_i, \quad \sum_i G_i = 1 \quad (2.3)$$

so wird Gleichung (2.2) zu

$$j \cdot \frac{dG_i}{dx} = M_i r_i, \quad \sum_i M_i r_i = 0 \quad (2.4)$$

Gleichung (2.4) ist noch allgemeingültig hinsichtlich der Reaktionsmechanismen und der Reaktionsgeschwindigkeiten der Einzelkomponenten.

Für die Wärmestromdichte q_1 durch Konvektion und Reaktion gilt

$$\frac{dq_1}{dx} = j \frac{dH}{dx} \quad (2.5)$$

Die Enthalpie H eines Gemisches läßt sich mit den Enthalpien der Einzelkomponenten i ausdrücken durch

$$H = \frac{\sum_i c_i M_i H_i}{\rho} \quad (2.6)$$

Die Wärmestromdichte q_2 durch Wärmeleitung und Stoffdiffusion beträgt

$$q_2 = -\lambda \frac{dT}{dx} + \sum_i c_i M_i H_i v_{Di} \quad (2.7)$$

Vernachlässigt man kinetische Energie, Flammenstrahlung und innere Reibung, was nach Wagner /3/ zulässig ist, so ist nach dem Energieerhaltungssatz

$$\frac{dq_1}{dx} + \frac{dq_2}{dx} = 0 \quad (2.8)$$

Mit Gleichung (2.3) folgt dann

$$-\frac{d}{dx} \left(\lambda \frac{dT}{dx} \right) + j \frac{d}{dx} \sum_i G_i H_i = 0 \quad (2.9)$$

Bezeichnet man mit x_∞ eine Stelle, an der alle Gradienten verschwinden, z.B. weit vor oder hinter der Flamme, kann man Gleichung (2.9) integrieren zu

$$\lambda \frac{dT}{dx} = j \left[\left(\sum_i G_i H_i \right)_{x_\infty} - \left(\sum_i G_i H_i \right)_{x_m} \right] \quad (2.10)$$

Die Diffusionsgeschwindigkeit v_{Di} kann mit den binären Diffusionskoeffizienten D_{ik} beschrieben werden durch

$$v_{Di} = \frac{c}{\rho} \frac{1}{c_i} \sum_k M_i D_{ik} \frac{d}{dx} \left(\frac{c_k}{c} \right) \quad (2.11)$$

Mit den Gleichungen (2.1) und (2.3) ergibt sich nach einigen Umformungen

$$\frac{d}{dx} \left(\frac{c_i}{c} \right) = \frac{j}{c} \sum_k \frac{1}{D_{ik}} \left(c_i \frac{G_k}{M_k} - c_k \frac{G_i}{M_i} \right) \quad (2.12)$$

Die Gleichungen (2.4), (2.10) und (2.12) werden auch als "Hirschfelder'sche Flammgleichungen" bezeichnet /12/. Sie sind in der nachfolgenden Übersicht noch einmal zusammengestellt:

$$j \frac{dG_i}{dx} = M_i r_i$$

$$\lambda \frac{dT}{dx} = j \left[\left(\sum_i G_i H_i \right)_{x^-} - \left(\sum_j G_j H_j \right)_{x_\infty} \right]$$

$$\frac{d}{dx} \left(\frac{c_i}{c} \right) = \frac{j}{c^2} \sum_k \frac{1}{D_{ik}} \left(c_i \frac{G_k}{M_k} - c_k \frac{G_i}{M_i} \right)$$

Die Flammenfrontgeschwindigkeit entspricht der mittleren Gasgeschwindigkeit v , die sich aus der Beziehung (2.1) $v = j/\rho$ ergibt. Dabei ist für ρ definitionsgemäß (s. Kapitel 1.2) der Wert unter Anfangsbedingungen, also ρ_0 einzusetzen.

Die Hirschfelder'schen Flammengleichungen bilden ein System gekoppelter, nichtlinearer Differentialgleichungen, das unter geeigneten Randbedingungen nur mit erheblichem numerischen Rechenaufwand gelöst werden kann. Schwierigkeiten ergeben sich dabei aus der Komplexität der in einer Flamme ablaufenden chemischen Reaktionen. Zur Bestimmung der Reaktionsgeschwindigkeiten r_i in Gleichung (2.4) sind zunächst genaue Kenntnisse über den Verlauf der Gesamtreaktion in ihren sämtlichen Teilschritten erforderlich. Dazu müssen auch die einzelnen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten und deren Abhängigkeit von der Temperatur bekannt sein, also Stoffgrößen, die im allgemeinen schwer zugänglich

sind. Dies gilt sinngemäß auch für Diffusionskoeffizienten, da die meisten an der Umsetzung beteiligten Komponenten bzw. Zwischenprodukte in Form von Radikalen vorliegen.

2.2 Lösungsverfahren (Literaturübersicht)

Umfassende Lösungen aus dem Hirschfelder'schen Flammengleichungssystem wurden erst durch die Entwicklung moderner Rechenautomaten möglich. Doch auch schon früher wurde versucht, durch vereinfachende Annahmen das mathematische Problem analytisch zu lösen. In den folgenden Abschnitten wird daher zwischen klassischen und modernen Lösungsverfahren unterschieden.

2.2.1 Klassische Lösungsverfahren

Die wohl umfassendste Literaturübersicht über klassische Vorgehensweisen liefert das Sammelreferat von Franze und Wagner /3/. Daraus sollen im folgenden einige charakteristische Arbeiten genannt werden.

Vereinfachungen zur Lösung des Flammengleichungssystems ergeben sich dadurch, daß entweder nur die Wärmeleitung oder nur die Diffusion aktiver Teilchen als geschwindigkeitsbestimmender Schritt angesehen wird. Stark einschränkend sind in allen Fällen die Annahmen über die Reaktionsgeschwindigkeit.

2.2.1.1 Theorie der Wärmeleitung

Nach der reinen Wärmetheorie /13/ wird vorausgesetzt, daß unterhalb einer Zündtemperatur T_i (siehe Abbildung 1) keine Reaktion stattfindet und der zur Weiterzündung notwendige Energiefluß nur durch Wärmeleitung von der Reaktionszone erfolgt. Für den Bereich $T > T_i$ müssen Angaben über die (Gesamt)-Reaktionsgeschwindigkeit gemacht werden.

Nimmt man im einfachsten Fall an, daß die spezifische Wärme c_p und die Wärmeleitfähigkeit λ temperaturunabhängig sind, gelten für den Temperaturverlauf bis T_i die in Kapitel 1.2 abgeleiteten Beziehungen. Setzt man weiter als erste Näherung die Reaktionsgeschwindigkeit und sämtliche Konzentrationsgradienten in der Reaktionszone konstant (d.h. eine feste Geschwindigkeitskonstante k (in s^{-1}) und eine feste Dicke η der Reaktionszone), wird der Temperaturverlauf im Bereich $T > T_i$ beschrieben durch

$$T - T_i = (T_E - T_O) \frac{x}{\eta} - \frac{(T_i - T_O) \left[\exp\left(-\frac{j c_p}{\lambda} x\right) - 1 \right]}{\exp\left(-\frac{j c_p}{\lambda} \eta\right) - 1} \quad (2.13)$$

Setzt man die Temperaturgradienten bei $T = T_i$ zusammen, also

$$T = T_i : \quad \left(\frac{dT}{dx}\right)_{T < T_i} = \left(\frac{dT}{dx}\right)_{T > T_i} , \quad (2.14)$$

gilt

$$\frac{T_i - T_O}{T_E - T_O} = \frac{1 - \exp\left(-\frac{j c_p}{\lambda} \eta\right)}{\frac{j c_p}{\lambda} \eta} \quad (2.15)$$

Die Flammengeschwindigkeit Λ wird durch Reihenentwicklung bei kleinen Exponenten zu

$$\Lambda = \sqrt{\frac{T_E - T_i}{T_E - T_O} \cdot \frac{T_O}{T} \cdot \frac{\lambda k}{c_p \rho}} \quad (2.16)$$

Wenn auch in Gleichung (2.16) die unbekannte Geschwindigkeitskonstante k enthalten ist und die Flammengeschwindigkeit von der willkürlich gewählten Zündtemperatur T_i abhängt, so wird dennoch hier schon der quadratische Zusammenhang zwischen der Flammengeschwindigkeit und den Transportgrößen (hier der Temperaturleitfähigkeit $\lambda/(c_p \rho)$) hergestellt, der später von Schultz-Grunow /14/ mittels Dimensionsanalyse nachgewiesen wurde /12/.

$$\Lambda \sim \sqrt{\frac{\lambda}{c_p \rho}} \quad (2.17)$$

Andere Autoren /16-20/ erweiterten die reine Wärmetheorie durch Ansätze für die Reaktionsgeschwindigkeit, in denen neben der Temperatur auch die Konzentration einer charakteristischen Gemischkomponente (z.B. des Brennstoffes B) als Parameter auftritt.

So erhielt Bartholomé /15, 16/ mit

$$-r_B = k \cdot c_B^\alpha \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \approx \beta \cdot (c_B T)^\alpha \quad (2.18)$$

einen expliziten Ausdruck für die Flammengeschwindigkeit Λ , z.B. bei der Reaktionsordnung $\alpha = 2$

$$\Lambda = \sqrt{\frac{T_E - T_O}{T_i - T_O} (c_{Bo} T_O^2) \cdot \frac{\lambda \beta}{\rho c_p}} \quad (2.19)$$

Die Eliminierung der Zündtemperatur T_i gelang Frank-Kamenetskii, Zeldowich und Semenov /21/ unter anderem mit der Voraussetzung, daß die Gesamtenthalpie vom Frischgas über die Flammenzone zum Verbrannten konstant bleibt. Diffusionseinflüsse von Anfangs- bzw. Endprodukt werden hier über die Lewis-Zahl Le mit

$$D = \frac{\lambda}{\rho c_p} \frac{1}{Le} \quad (2.20)$$

berücksichtigt. Mit einem ähnlichen Ansatz für die Reaktionsgeschwindigkeit wie in Gleichung (2.18) wird dann

$$\Lambda = \sqrt{\frac{2}{\rho_o c_p} \frac{k_o \exp(-\frac{E}{RT}) c_{Bo}^{\alpha-1}}{(T_E - T_o)^{\alpha+1}} \left(\frac{T_o}{T_E}\right)^\alpha \left(\frac{c_o}{c_E}\right)^\alpha Le^\alpha \left(\frac{RT_E^2}{E}\right)^{\alpha+1}} \quad (2.21)$$

wobei c_o/c_E die Änderung der Molzahl vom Unverbrannten zum Verbrannten bedeutet.

Alle Lösungsansätze, die sich auf die Theorie der Wärmeleitung gründen, setzen voraus, daß die (von der Gemischzusammensetzung abhängige) Endtemperatur T_E bekannt ist. Diese kann unter idealen Bedingungen bei Anwendung des Energiegleichgewichts auf die gesamten ablaufenden Reaktionen theoretisch berechnet werden /22, 23/. Daneben gibt es heute Methoden, z.B. die Strahlungs-pyrometrie, mit denen Flammentemperaturen unter realen Bedingungen gemessen werden können /22/.

Es sollte nicht übersehen werden, daß die klassischen Wärmeleitungstheorien Stand des Wissens in den Jahren 1950 bis 1960 waren und daraus abgeleitete Bestimmungsgleichungen für die Flammengeschwindigkeit Λ , wie im vorhergehenden an drei Beispielen gezeigt, allenfalls nur qualitativ und in sehr engen Bereichen gültig sind. Dies gilt sinngemäß auch für den folgenden Abschnitt.

2.2.1.2 Diffusionstheorie

Bei Verbrennungsreaktionen üben aktive Teilchen als Kettenträger oder Radikalbildner einen wesentlichen Einfluß aus. Aktive Teilchen können auch schon im unverbrannten Gas vorhanden sein. So ist zum Beispiel schon lange bekannt, daß Wasserstoff und Wasserdampf in sehr kleinen Konzentrationen die Geschwindigkeit von Kohlenmonoxidflammen stark erhöhen.

Diffusionstheorien konzentrieren sich auf aktive Teilchen, die in heißen Flammengasen oder nur in der Verbrennungszone selbst in Form freier Atome bzw. Radikale vorliegen. Durch Diffusion steigt die Konzentration dieser Teilchen im Gebiet einsetzender Reaktion weit über den Wert an, der aufgrund thermischer Gleichgewichte zu erwarten ist /3, 24/.

Da Diffusion und Wärmeleitung vergleichbare Vorgänge sind, liegt es nahe, analog zur Zündtemperatur T_i bei der Wärmetheorie eine Entzündungskonzentration c_{iz} zu definieren, bei der gerade die Zündung eines Gasgemisches einsetzt. Man kann dann in Anlehnung an die Wärmetheorie eine Diffusionstheorie aufbauen /3/ und erhält in ungefährrer Analogie zu Gleichung (2.16)

$$\Lambda = \sqrt{k D_i \frac{T_o}{T} \frac{c_m - c_{iz}}{c_{iz}}} \quad (2.22)$$

c_m ist die Konzentration der aktiven Teilchen am Ende der Flammenfront.

Noch mehr Schwierigkeiten als bei der Wärmetheorie bereitet die Berücksichtigung der Reaktion. Von Tanford und Pease /25/ wird angenommen, daß sich die Geschwindigkeit r_E , mit der sich das Endprodukt E bildet, additiv aus den Produkten der Brennstoffkon-

zentration c_B und der Konzentration jeweils eines aktiven Teilchen i zusammensetzt, also

$$r_E = \sum_i k_i c_i c_B. \quad (2.23)$$

Kettenverzweigungen sind demnach nicht zugelassen. Weiterhin werden konstante mittlere Flammentemperaturen bzw. von der Temperatur unabhängige Reaktionsgeschwindigkeiten angenommen. Diese Vereinfachungen sind nur mit der mathematischen Notwendigkeit zur analytischen Lösung des Problems zu begründen. Dann läßt sich nach /3, 25/ zeigen:

$$\Lambda \sim \sqrt{\sum_i k_i c_{iTE} D_i} \quad (2.24)$$

Sollen die einzelnen Reaktionsschritte und deren Temperaturabhängigkeiten genauer berücksichtigt werden, so muß, falls diese überhaupt bekannt sind, das Gleichungssystem mit numerischen Methoden gelöst werden.

2.2.2 Moderne Lösungsverfahren, Verfahren von Warnatz

Umfassende Lösungen bei mehreren Reaktionsmechanismen unter Berücksichtigung von Wärmeleitung und Diffusion aktiver Zwischenprodukte waren früher nur bei relativ einfachen Systemen, z.B. beim Ozonzerfall /26/, möglich. Dagegen können heute Flammgleichungen mit "vollständiger" chemischer Kinetik und mit aufwendigen Modellen für Stofftransportvorgänge gelöst werden. Dies wurde zum einen erst mit der Erforschung wichtiger Elementarreaktionen in Verbrennungsprozessen ermöglicht; zum anderen trug die Verfügbarkeit sehr schneller Computer zusammen mit der Entwicklung numerischer Methoden zur Lösung von Differentialgleichungssystemen bei /27, 28/.

Voraussetzung für die Gültigkeit der allgemeinen Flammgleichungen in Kapitel 2.1 war der eindimensionale Fall, d.h. es genügte, die Struktur der Flamme nur bezüglich einer einzigen Koordinate x zu betrachten. Damit werden radiale Stoff- und Wärmetransportvorgänge, wie sie z.B. bei gekrümmten Flammenflächen auftreten, vernachlässigt. Diese Annahme wird auch noch bei den modernen Lösungsverfahren gemacht. In der Praxis können derartige "Flachflammen" durch spezielle Brennerkonstruktionen realisiert werden /29 - 31/.

Zur mathematischen Simulierung der stationären Flammenausbreitung wurden in jüngster Zeit verschiedene, aber ähnliche Lösungswege beschritten /28, 32-34/. Stellvertretend dafür soll im folgenden speziell auf eine implizite Differenzenmethode eingegangen werden, wie sie von Warnatz /28/ angewandt wird.

2.2.2.1 Grundgleichungen

Die Erhaltungssätze für Masse und Energie werden mit einer massebezogenen Reaktionsgeschwindigkeit r'_i , einem (Austausch-) Flächenverhältnis A und einem Massenanteil w_i für alle Komponenten i wie folgt formuliert:

$$\rho \frac{dT}{dt} = -\rho v \frac{dT}{dx} - j_H \frac{dT}{dx} - \frac{r'_i h_i}{c_p} + \frac{1}{A c_p} \frac{d}{dx} (A \lambda \frac{dT}{dx}) \quad (2.25)$$

$$\rho \frac{dw_i}{dt} = -\rho v \frac{dw_i}{dx} - \frac{1}{A} \frac{d(A g_i)}{dx} + r'_i \quad (2.26)$$

Der Diffusionsstrom g_i und der Hauptdiffusionsstrom g_H werden gebildet durch

$$g_i = D_i \rho \frac{dw_i}{dx} \quad (2.27)$$

und

$$g_H = \frac{1}{c_p} \sum_i c_{pi} g_i \quad (2.28)$$

Zur Ermittlung der Diffusionskoeffizienten D_i , die ihrerseits aus den binären Diffusionskoeffizienten D_{ik} abgeleitet werden können, und der Wärmeleitfähigkeiten λ_i stehen in der neueren Literatur Werte bzw. Berechnungsmethoden zur Verfügung /35, 36/.

2.2.2.2 Rechengang

Zum Zeitpunkt $t = 0$ startet man mit angenommenen Temperatur- und Konzentrationsprofilen aller auftretenden Spezies i längs der Stromfunktion ψ , die durch $d\psi = \rho dx$ definiert ist. An jedem Gitterpunkt in Abbildung 2 werden dann die Gradienten dw_i/dx und dT/dx durch Differenzenquotienten ersetzt, die durch parabolische Näherung zwischen je drei benachbarten Gitterpunkten gebildet werden.

Aus den Erhaltungssätzen (2.25) und (2.26) berechnet man die zeitlichen Ableitungen dw_i/dt bzw. dT/dt und erhält schließlich neue Werte w_i und T für das Temperatur- und Konzentrationsprofil zum Zeitpunkt $t + \Delta t$.

Durch dieses Verfahren wird das Problem zu einem tridiagonalen linearen Gleichungssystem reduziert.

An den Eckpunkten des Gitterpunktsystems gelten für frei brennende Flammen die Randbedingungen

$$w_i = w_o, \quad T = T_o \quad \text{für die "kalte" Seite}$$

und

$$dw_i/dx = \text{const}, \quad dT/dx = \text{const} \quad \text{für die "heiße" Seite.}$$

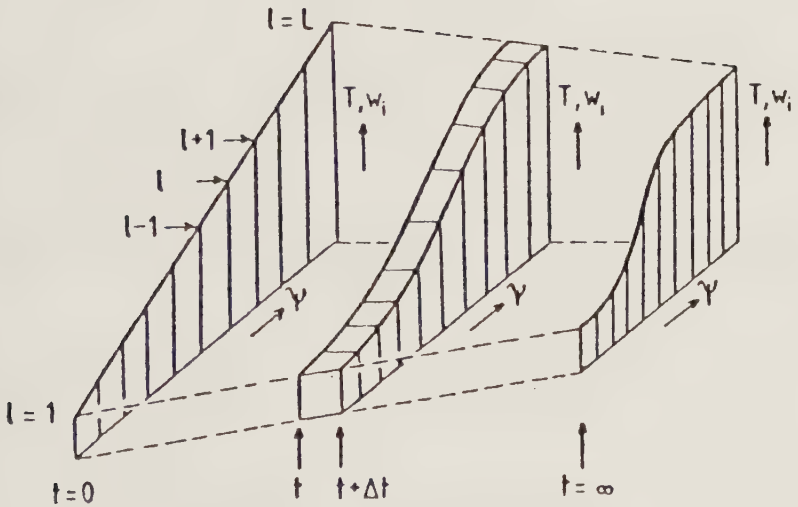


Abb. 2: Gitterpunktsystem nach dem Verfahren von Warnatz /28/

Für brennerstabilisierte Flammen müssen auf der kalten Seite andere Randbedingungen gelten, da die Brennerwand als Wärmesenke wirkt und die Rekombination aktiver Zwischenprodukte begünstigt.

2.2.2.3 Reaktionsmechanismen

Der spezifische Reaktionsmechanismus übt auf die Flammenstruktur und -geschwindigkeit einen entscheidenden Einfluß aus. Allein bei der Verbrennung von Kohlenwasserstoffen sind ca. 200 Elementarreaktionen, d.h. die Konstanten k_o , b und E der Gleichung für die Reaktionsgeschwindigkeitskonstante k_i

$$k_i = k_o \cdot T^b \cdot \exp\left(-\frac{RE}{T}\right), \quad (T \text{ in K}), \quad (2.29)$$

bekannt /28/. Um diese Zahl zu reduzieren, müssen unbedeutende Reaktionen vernachlässigt werden, indem man z.B. den Reaktions-term in Gleichung (2.25) und (2.26) mit dem Konvektionsterm oder die Reaktionsgeschwindigkeiten r_i untereinander vergleicht. So bleiben bei Tsatsaronis /32/ für die Methan-Sauerstoff-Reaktion 29 und bei Warnatz /28/ für die Oxidation von C_1/C_2 -Kohlenwasserstoffen mit Luft 82 Einzelreaktionen übrig.

Durch Sensitivitätsanalysen bei der Verbrennung von Alkanen und Alkenen konnte nachgewiesen werden, daß die Oxidation von H_2 und CO die beiden wichtigsten Teilschritte sind. Höhere Kohlenwasserstoffe werden sehr schnell zu CH_3 , C_2H_5 und C_2H_4 abgebaut. Die Reaktionen dieser Zwischenprodukte bestimmen zusammen mit dem H_2 - O_2 - und dem CO-OH-Mechanismus ganz wesentlich die Flammengeschwindigkeit. Dies ist auch der Grund für die Ähnlichkeit von gemessenen Flammengeschwindigkeiten in diesen Stoffgruppen /27/.

2.2.2.4 Ergebnisse und deren sicherheitstechnische Bedeutung

Die vorstehend beschriebene Rechenmethode ist sehr aufwendig. Daher wurden bisher im allgemeinen nur binäre Brenngasgemische ($C_1 \dots C_4$ -Alkane, -Alkene, Wasserstoff, Methanol) jeweils in Luft bzw. Sauerstoff untersucht. Besonders interessant sind daneben die Systeme $H_2/CO/O_2$ bzw. $H_2O/CO/O_2$. Schon in Kapitel 2.2.1.2 wurde auf die beschleunigende Wirkung von Wasserstoff und Wasserdampf auf Kohlenmonoxidflammen hingewiesen.

Als Ergebnis erhalten Warnatz, Tsatsaronis und andere Autorengruppen /34/ Flammengeschwindigkeiten, Temperaturverläufe und Konzentrationsprofile einzelner Komponenten (auch Zwischenprodukte) in Abhängigkeit der Einstellparameter Druck, Anfangstemperatur und Frischgaszusammensetzung.

Die berechneten Flammengeschwindigkeiten stimmen bei den untersuchten Systemen recht gut mit gemessenen Werten überein. Dagegen unterscheiden sich die rechnerisch und experimentell ermittelten Werte von Temperatur- und Konzentrationsprofilen vor allem bei höheren Kohlenwasserstoffen, bei polynären Gemischen und bei brennstoffreichen Gemischen zum Teil beträchtlich.

Der Grund hierfür könnte einerseits darin liegen, daß heute die Entwicklung moderner Meßmethoden für Temperatur und Teilchenkonzentrationen in Flammen noch nicht abgeschlossen ist, so daß auf diesem Gebiet veröffentlichte Ergebnisse noch mit Unsicherheiten behaftet sein können. Andererseits sind anscheinend spezifische Schritte im Reaktionssystem noch nicht genau genug bekannt /27/. Auch wenn es inzwischen möglich ist, Flammenstrukturen an einzelnen Gemischen ausgewählter Zusammensetzung zu berechnen, kann man deshalb auf weitere experimentelle Untersuchungen nicht verzichten.

Aus sicherheitstechnischer Sicht im Sinn der Aufgabenstellung (Kapitel 1) ist die Kenntnis eines detaillierten Reaktionsschemas weniger wichtig als die Frage nach realen laminaren Flammgeschwindigkeiten eines vorgegebenen Brenngases in allen seinen möglichen Mischungen mit Luft und deren Abhängigkeit von den Umgebungsbedingungen. Auch dazu gibt es in der Literatur Berechnungsformeln meist empirischer Art, auf die erst in Kapitel 5.7 eingegangen werden soll, um direkte Vergleiche zu den experimentellen Ergebnissen der vorliegenden Arbeit ziehen zu können.

3. AUSWAHL DER MESSMETHODE

Meßmethoden zur experimentellen Bestimmung laminarer Flammfrontgeschwindigkeiten können in statische und dynamische Methoden unterteilt werden.

Eine ausführliche Literaturübersicht über die verschiedenen Verfahren wird von Batheja /2/ gegeben. Im folgenden soll daher nur auf wenige prinzipielle Unterschiede hingewiesen werden, deren Vor- und Nachteile schließlich zur Auswahl des in Kapitel 4 beschriebenen Verfahrens führten.

3.1 Statische Methoden

Bei statischen Methoden wird die Geschwindigkeit einer Flamme in einem ruhenden Brenngas/Luft-Gemisch photographisch gemessen. Da ein während der Verbrennung ruhendes Gasgemisch im Experiment praktisch nicht zu realisieren ist, muß die gemessene Flammenbewegung mit berechneten oder ebenfalls gemessenen Werten für Dichte- und Temperaturgradienten korreliert werden. Bei fest umschlossenen Gemischen (Rohr-, Bombenmethode) ist zusätzlich die Registrierung des zeitlichen Druckanstiegs erforderlich.

Die Bombenmethode wird heute zur Ermittlung der Druckabhängigkeit von Flammengeschwindigkeiten oder zur direkten Bestimmung von Druckanstiegsgeschwindigkeiten verwendet. Großversuche führt man dagegen in Räumen mit leicht dehnbaren Wänden durch (Ballonversuche /6/). In allen Fällen besteht jedoch die Schwierigkeit, die zeitlich veränderliche Brennfläche exakt zu bestimmen bzw. geometrisch einfach (z.B. kugelförmig) zu halten.

3.2 Dynamische Methoden

Bei den dynamischen Methoden fließt der Frischgasstrom in eine stationäre Flamme hinein, die durch eine Stütze, etwa einem Brennerrohr, stabilisiert werden muß. Derartige Stützen üben z.B. durch Wärmeableitung einen störenden Einfluß auf den Randbereich einer Flamme aus.

Die Flammengeschwindigkeit wird aus der Frischgasgeschwindigkeit und deren relativen Lage zur Brennfläche berechnet. Brennerflammen kann man in dieser Hinsicht auswerten, wenn es gelingt, den Winkel zwischen der Brennfläche und der Anströmrichtung und den zugehörigen Betrag der Frischgasgeschwindigkeit in genügendem Abstand vom Brennerrand genau zu bestimmen. Dazu eignet sich besonders die Düsenbrennermethode, wie sie für die hier vorliegenden Untersuchungen benutzt wird.

4. BESCHREIBUNG DER GEWÄHLTEN MESSMETHODE

Mit einem Düsenbrenner wird eine stationäre Vormischflamme mit laminarer Kernströmung ebener Geschwindigkeitsverteilung in der Frischgaszone und mit geringer Grenzschichtdicke erzeugt. Eine derartige Strömungskonfiguration führt zu einem rotationssymmetrischen Brennfrontkegel, wie er in Abbildung 4.1 skizziert ist.

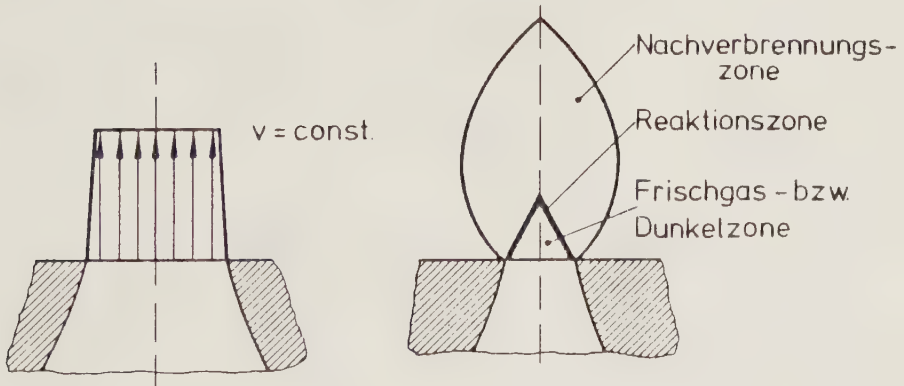


Abb. 4.1: Struktur der Düsenbrennerflamme mit Geschwindigkeitsprofil /22/

Die Reaktionszone wird von der Nachverbrennungszone, in der hauptsächlich Rekombinationsvorgänge stattfinden /5, 12, 22/, umgeben.

Die Flammengeschwindigkeit Λ errechnet sich durch Vektorzerlegung aus der (Kern-) Strömungsgeschwindigkeit v_0 und dem Kegelöffnungswinkel ϕ nach Abbildung 4.2 zu

$$\Lambda = v_o \cdot \sin \frac{\phi}{2} \quad (4.1)$$

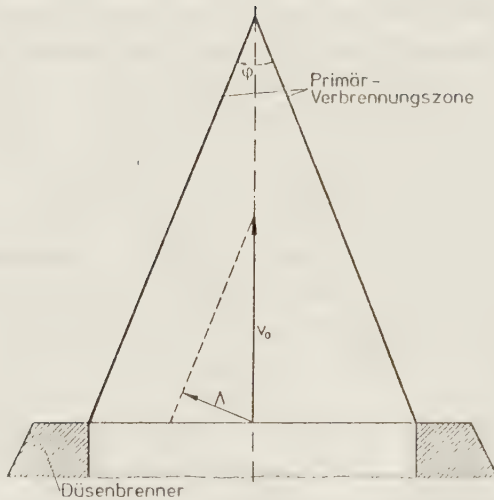


Abb. 4.2: Berechnung der Flammengeschwindigkeit nach der Düsenbrennermethode

Beide Größen v_o und ϕ möglichst genau zu bestimmen, erfordert berührungslose optische Meßtechniken.

4.1 Gesamtaufbau der Apparatur

Eine schematische Darstellung der Versuchsanlage, wie sie für die hier vorliegenden Messungen laminarer Flammengeschwindigkeiten benutzt wurde, wird in Abbildung 4.3 gezeigt:

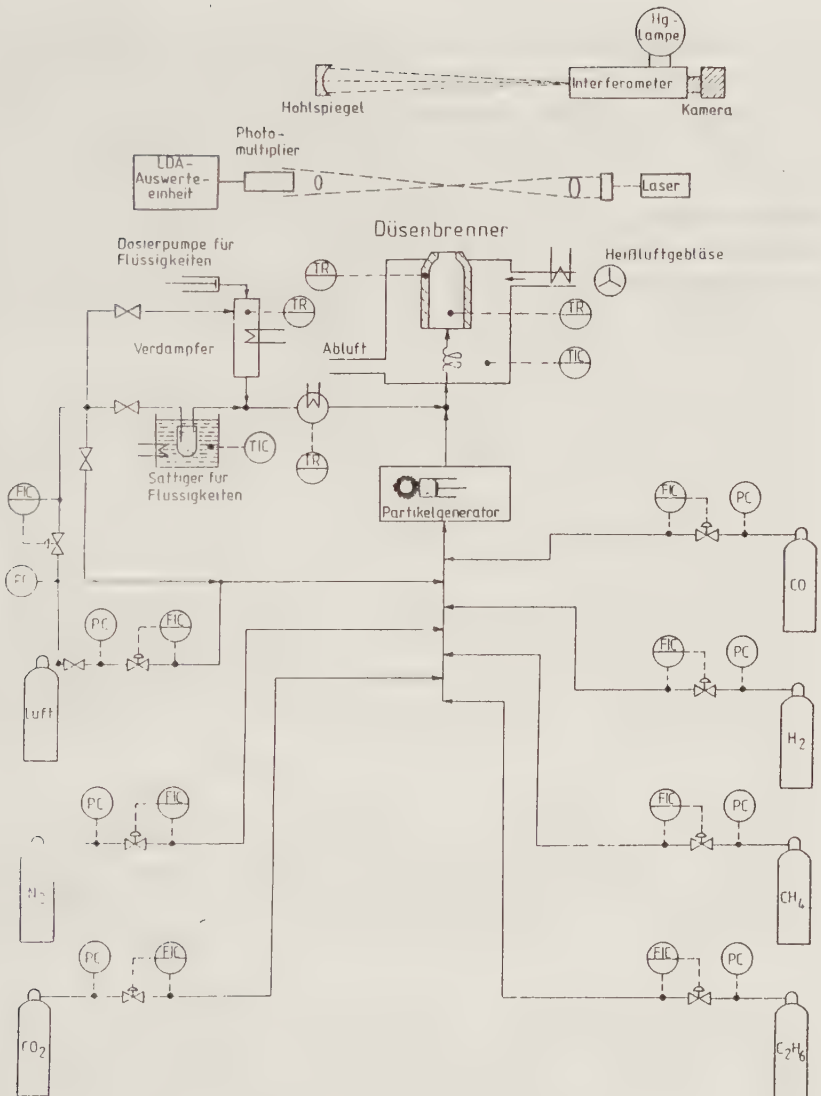


Abb. 4.3: Gesamtaufbau der Versuchsanordnung

Die trockenen Gasströme werden einzeln mittels Durchfluß-Meß- und Regelstrecken dosiert und gemeinsam einem Partikelgenerator, der für die in Kapitel 4.3 beschriebene Laser-Doppler-Anemometrie notwendig ist, zugeführt. Flüssigkeiten können direkt durch eine Pumpe dosiert, dann verdampft und zusammen mit einem konstanten Trägerluftstrom in einer beheizbaren Leitung den übrigen Gasen beigemischt werden. Man kann Dämpfe aber auch nach der Partialdruckmethode dosieren, indem ein trockener Luftstrom bei bestimmter Temperatur durch ein Sättigersystem geleitet wird.

Das gesamte partikelbeladene Gas-(Dampf-)Gemisch wird in einer Rohrschlange auf die gewünschte Vorwärmtemperatur gebracht und dem Düsenbrenner zugeführt. Die Rohrschlange und der Düsenbrenner sind zusammen in einem Gehäuse untergebracht, dessen Temperatur mit einem Heißluftgebläse geregelt werden kann.

Der Öffnungswinkel des Primärverbrennungskegels wird mit einer schlierenoptischen Einheit und die Frischgasgeschwindigkeit mittels Laser-Doppler-Anemometrie bestimmt. Beide Meßeinrichtungen sind in gleicher Höhe auf die Zone oberhalb der Brennerdüse gerichtet und gegeneinander um ca. 45° versetzt.

Um störende Einflüsse durch Schwingungen von vorneherein auszuschließen, wurden der Düsenbrenner und alle optischen Bauteile der Versuchsanordnung auf ein Untergestell mit Schwingungsdämpfern (Profil X 95, Firma Spindler und Hoyer) montiert.

Aus Sicherheitsgründen sind alle Apparate und Leitungen, die von explosionsfähigen oder kohlenmonoxidhaltigen Gemischen durchströmt werden, in einem Laborabzug untergebracht, und die Zuleitungen zur Gasversorgungseinheit mit Rückschlagsicherungen versehen.

4.2 Dosierung der Einsatzstoffe

Brenngase und Inertgase werden aus Gasflaschen, Luft aus einer Laborversorgungseinheit mit zusätzlicher Trockeneinrichtung bereitgestellt. Durchsatz und Zusammensetzung des Gasgemisches kann mit bis zu acht Durchflußmeß- und Regelstrecken konstant gehalten werden. Die Dosiereinheiten (Fa. Brooks) bestehen jeweils aus Druckregler (Typ 8601) mit Anzeige, thermischem Massendurchflußmesser (Typ 5810, 5811) mit Regelventil (Typ 5835 A) und elektronischer Regeleinheit (Typ 4250) mit digitaler Anzeige und Sollwertsteller /37/. Die Regelbereiche sind aufgrund des Meßprinzips von der spezifischen Wärme der einzelnen Gase abhängig. Bezogen auf Luft reichen sie von 0 - 0.56 Nl/min bis zu 0 - 10.3 Nl/min.

Die Kalibrierung wird mit einer speziellen am Institut entwickelten Meßeinrichtung vorgenommen /39/. Wegen der Lageempfindlichkeit der Durchflußmesser empfiehlt es sich bei jedem Umbau, die entsprechenden Kennlinien - die in den meisten Fällen gerade sind - neu zu erstellen. Dies gilt auch bei einem Wechsel der Gasorte. Man kann so eine Dosiergenauigkeit besser 0,2% erreichen.

Zur Dosierung von Flüssigkeiten wird eine Dauerinfusionspumpe (Typ Unita I, Fa. Braun) verwendet, die 12 diskrete Einstellungen zwischen 0.075 und 5 ml Flüssigkeit pro Minute zuläßt /40/. Im nachfolgenden Verdampfer wird die Flüssigkeit in Glaswolle fast bis auf Siedetemperatur erhitzt, und der Dampf von einem Trägerluftstrom aufgenommen.

Die Partialdruckmethode, nach der sich die Dampfkonzentration aus der vorgelegten Temperatur und der entsprechenden Dampfdruckkurve berechnet, sollte nur benutzt werden, wenn äußere Umstände, z.B. Aggressivität des Mediums, die Verwendung von Flüssigkeits-Dosierpumpen verbieten. In diesem Fall hat sich ein System zweier hintereinandergeschalteter Sättiger, von denen ersterer bei einer geringfügig höheren Temperatur betrieben wird, bewährt.

4.3 Düsenbrenner

In Abbildung 4.4 ist der Düsenbrenner, eine vereinfachte Konstruktion nach Lindow /12/, dargestellt.

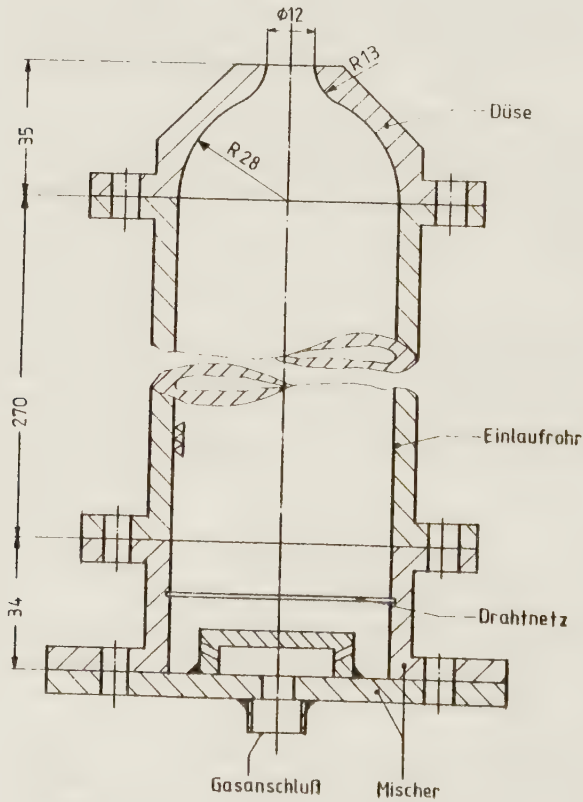


Abb. 4.4: Düsenbrennerkonstruktion nach Lindow /12/; Maße in mm

Er wurde in Zusammenarbeit mit der zentralen Mechanikwerkstatt des Fachbereiches Ingenieurwissenschaften der Universität Erlangen gebaut und hat sich bereits bei der Infrarot-Thermographie zur Eichung von Strahldichteanzeigen bewährt /22/.

Charakteristisch für diesen Brenner ist die doppelt gekrümmte Düse nach Maché und Hebra /41/, die die Forderungen an die Strömungskonfiguration (s. Kapitel 4, Anfang) erfüllt. Dies wird noch in Kapitel 5.1.2 gezeigt. Die Düse wurde nach einer Kontur angefertigt, wie sie Michalke /42/ für seine Berechnungen an laminaren Düsengrenzschichten angibt.

Die Brennereinrichtung besteht weiter aus einem Mischerteil und einem Einlaufrohr zur Ausbildung eines laminaren Strömungsprofils. Das engmaschige Drahtnetz wirkt gleichzeitig als Strömungsgleichrichter und Flammenrückschlagsicherung.

Der Brenner ist aus hochwarmfestem Edelstahl gefertigt. Die Innenflächen sind poliert.

Um während des Betriebes die Temperaturen von Frischgas und Brennerwand kontrollieren zu können, wurden im Einlaufrohr zusätzlich noch Bohrungen für Thermoelemente angebracht.

Für die verschiedenen Prozeßgase waren sehr unterschiedliche Flammengeschwindigkeiten zu erwarten, die ebenso unterschiedliche Gas-Durchsätze notwendig machten. Da die Regelbereiche der Dosiereinrichtungen jedoch beschränkt sind (s. Kapitel 4.2), mußten noch mehr Einlaufrohre und Düsen in verschiedenen Größen mit entsprechenden, konischen Übergangsstücken zum Mischer angefertigt werden. Außer der in Abbildung 4.4 gezeigten Konstruktion wurden noch Düsen mit den Innendurchmessern 8.5, 6.25 und 4.2 mm verwendet. Auch für die Heißluftkammer mußten passende Zwischenringe zur Abdichtung gegen die Brennerdüse (etwa im oberen Drittel) angefertigt werden.

Temperaturen bis zu 500 K werden in der nach außen hin wärmeisolierten Heißluftkammer mittels eines Temperaturfühlers (Pt-100), eines Zweipunkt-Reglers und eines Heißluftgebläses (Typ Hotwind, Fa. Leister) mit einer maximalen Heizleistung von 1800 W konstant gehalten.

Anhand der angezeigten bzw. mitgeschriebenen Temperaturverläufe von Heißluftkammer, Brennerwand und Frischgas kann man beurteilen, wann sich ein stationärer Zustand eingestellt hat.

4.4 Meßeinrichtung zur Bestimmung der Gasgeschwindigkeiten

Wegen der Verdrängungswirkung der Strömungsgrenzschicht am Brenneraustritt (s. Abbildung 4.1) kann die Anströmgeschwindigkeit v_0 nicht aus Volumendurchsatz und Querschnitt berechnet werden. Zudem beeinflusst der sogenannte Flammenrückdruck, der durch Erwärmung, Expansion und Beschleunigung der Gase in der Reaktionszone entsteht, die Geschwindigkeitsverteilung an dieser Stelle. Zur Bestimmung der Anströmgeschwindigkeit ist deshalb ein Verfahren erforderlich, das, ohne Strömungs- und Verbrennungsabläufe zu stören, zum einen genaue Meßwerte liefert, zum anderen die Strömungskonfiguration so gut auflöst, daß der Kernbereich eindeutig von der Grenzschicht und anderen Gebieten mit störenden Einflüssen abgegrenzt werden kann. Mit der Laser-Doppler-Anemometrie (LDA) wurde in den vergangenen Jahren ein Meßverfahren entwickelt, das diesen Anforderungen genügt.

4.4.1 Prinzip der Laser-Doppler-Anemometrie

Das Strömungsmedium muß lichtdurchlässig sein und eine geringe Anzahl feinsten Partikel enthalten. Trifft ein Laserstrahl am Meßort auf diese Partikel, erfährt die Frequenz des Streulichtes eine Dopplerverschiebung, die zur Partikelgeschwindigkeit direkt proportional ist.

Da einzelne Schwingungszüge der dopplerverschobenen Lichtfrequenz weder von Photodetektoren aufgelöst noch von der nachgeschalteten Elektronik verarbeitet werden können /43/, verwendet man Referenzanordnungen, von denen die Differentialanordnung am gebräuchlichsten ist.

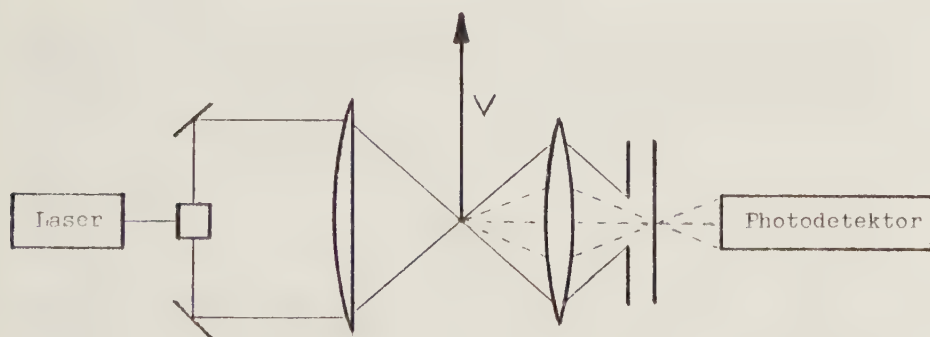


Abb. 4.5: Laser-Doppler-Anemometer, Differentialanordnung

Wie in Abbildung 4.5 zu sehen ist, wird das Laserlicht in zwei Teilstrahlen gleicher Intensität aufgeteilt, die dann durch eine Linse zum Schnitt gebracht werden. Dort erzeugt jeder Teilstrahl an derselben Partikel je ein dopplerefrequenzverschobenes Streulichtfeld.

Der Photodetektor empfängt die Überlagerung der Streulichtfelder als Schwebung, deren Frequenz richtungsunabhängig und mit der Dopplerfrequenz identisch ist /43/. Das Streulicht kann daher mit einer Sammellinse großer Apertur aufgefangen werden, wobei durch Blenden im Strahlengang verhindert wird, daß die beiden Teilstrahlen direkt zum Photodetektor gelangen.

Aus der Dopplerfrequenz f_D , dem Schnittwinkel θ und der Wellenlänge λ der Laserstrahlen ergibt sich schließlich für die Partikelgeschwindigkeit v die in /43, 44/ abgeleitete Beziehung

$$v = f_D \frac{\lambda}{2 \sin(\theta/2)} = f_D \cdot C \quad (4.2)$$

C ist der Kalibrierfaktor für das Frequenznachlaufgerät, das die Signale des Photodetektors elektronisch auswertet.

4.4.2 Beschreibung des LDA-System

Das benutzte LDA-System besteht aus einem Laser (Modell 120, Fa. Spectra-Physics), einer Strahlteilereinheit, einem Photomultiplier (beides aus Modell 55 X, Fa. DISA) und einem Frequenznachlaufgerät (Modell 55N20, Fa. DISA).

Der Helium-Neon-Laser erzeugt rotes Laserlicht mit einer Wellenlänge von 632,8 nm und einem in /45/ definierten Strahlendurchmesser von 0,8 mm. Mit einer Ausgangsleistung von 5 mW fällt er nach den derzeitigen Unfallverhütungsvorschriften /46/ in die Kategorie der schwachen Laser, für die keine besonderen Schutzvorrichtungen in den Betriebsräumen erforderlich sind.

Der (Prismen-)Strahlteiler ist mit einer Frontlinse (Brennweite 300 mm) gekoppelt und um die optische Achse drehbar. Dadurch können Geschwindigkeiten in verschiedenen Richtungen gemessen werden. Die Teilstrahlen haben vor der Frontlinse einen Abstand von 60.5 mm.

Mit diesen Angaben errechnet sich der Schnittwinkel der Teilstrahlen zu $\theta = 11,5^\circ$ und der Kalibrierfaktor C zu $3,154 \frac{\text{m/s}}{\text{MHz}}$.

Das eigentliche Meßvolumen, von dem aus das vorwärts gestreute Licht in den Photomultiplier gelangt, hat nach der Rechenvorschrift in /44/ eine Länge von 1,3 mm und einen Durchmesser von 0,12 mm.

Laser und Strahlteilereinheit sind durch eine optische Bank fest verbunden. Das Meßvolumen bleibt damit ortsfest, so daß auch der Photomultiplier nur zu Beginn justiert werden muß. Zur Ermittlung lokaler Strömungsgeschwindigkeiten kann die gesamte Düsenbrennereinrichtung mit einer Verschiebeeinheit in jede gewünschte Position gebracht werden.

Das Frequenznachlaufgerät (Tracker) enthält einen mit konstanter Amplitude schwingenden Oszillator, dessen Frequenz durch einen schnellen Regelkreis auf die ankommende Dopplerfrequenz synchronisiert wird /43/. Innerhalb eines beliebigen, einstellbaren Zeitabschnitts (mindestens 1 Sekunde) wird ein Mittelwert der gefundenen Dopplerfrequenzen gebildet, der nach Umrechnung mit dem ebenfalls einstellbaren Kalibrierfaktor C direkt als Geschwindigkeit in m/s angezeigt wird.

Zusätzlich kann mit dem Tracker ein Frequenzspektrum des Dopplersignals (über einen Zeitabschnitt von ca. 20 Sekunden) aufgenommen werden. Diese Möglichkeit wurde bei einem der Vorversuche (Kapitel 5.1.1) genutzt.

4.4.3 Erzeugung von Streupartikeln

Tracker benötigen ein möglichst kontinuierliches Dopplersignal, was bei einer Partikeldichte von ca. 10^5 bis 10^6 Partikel je cm^3 im Strömungsmedium erreicht werden kann. Für Messungen in Flammen sind Partikel aus Titandioxid, Aluminiumoxid oder Magnesiumoxid mit einem Durchmesser von 0,1 bis 10 μm geeignet /43/.

Für die Erzeugung von Streupartikeln mußte ein Verfahren ausgewählt werden, das eine gleichmäßige Dosierrate gewährleistet, ohne daß dadurch Gaszusammensetzung und -durchsatz verändert wird. Diese Voraussetzungen werden von dem verwendeten Partikel-generator (Typ SPS 101, Fa. OEI-Opto-Elektronische Instrumente) erfüllt.

Nach dessen Prinzip wird ein verdichteter Pulverkörper mittels einer rotierenden Bürste abgetragen. Das Pulver befindet sich in einem metallischen Zylinder (Füllmenge 6,3 cm^3) und wird kontinuierlich durch einen mit konstanter Geschwindigkeit bewegten Kolben auf die rotierende Bürste zugeschoben. Aus der Oberfläche des Pulverkörpers werden Partikel herausgebrochen und durch den Gasstrom, der die Bürste ausbläst, davongetragen. Die Dosierrate hängt nur vom Kolbenvorschub ab, der variiert und durch eine elektronische Regelung konstant gehalten werden kann /47/.

Bei den bisher durchgeführten Versuchen mit Titandioxid-Partikeln genügte ein Kolbenvorschub von ca. 5 mm/h, dies entspricht einer Dosierrate von ca. 7 mg/min bei einer angenommenen Stopfdichte von 1 g/ cm^3 .

4.5 Meßeinrichtung zur Bestimmung der Verbrennungszone

Wie aus der Berechnungsformel für die Flammengeschwindigkeit Λ in Gleichung (4.1) zu ersehen ist, haben Ungenauigkeiten bei der Ermittlung des Kegelöffnungswinkels ϕ einen relativ großen Fehlerbereich für die Flammengeschwindigkeit zur Folge. Um zu zuverlässigen Ergebnissen zu kommen, muß daher der Öffnungswinkel sehr genau bestimmt werden.

In der Literatur /2, 12/ wird unter allen üblichen Verfahren die Schlierenphotographie bevorzugt.

4.5.1 Prinzip des schlierenoptischen Verfahrens

Unter einer Schliere versteht man ein Gebiet, dessen Objektphase von der Umgebung abweicht. Die Objektphase ist das Produkt aus Brechungsindex und optischer Weglänge des Meßobjektes.

Die mit der Verbrennung verbundene Temperaturerhöhung verringert die Dichte und damit auch den Brechungsindex der Flammengase. Von Lindow /12/ wird nachgewiesen, daß in der Zone maximaler Objektphasenänderung die Änderung der optischen Weglänge vernachlässigbar klein gegenüber der des Brechungsindex' ist. Mit der Projektion dieser Zone kann man also ein ebenes Bild der räumlichen Flammenfront erzeugen. Dadurch wird die Schwierigkeit umgangen, die räumliche Ausdehnung einer Flamme durch Abel-Transformation berücksichtigen zu müssen, wie das etwa bei der IR-Thermographie der Fall ist /22, 48/.

Weiterhin wird in /12/ gezeigt, daß sich das Gebiet maximaler Objektphasenänderung nur um das frischgasseitige Krümmungsmaximum der Temperaturkurve (s. Abb. 1) erstrecken kann.

Damit ist auch ein eindeutiger Bezug zur Reaktionszone hergestellt: Die Zone maximaler Objektphasenänderung verläuft parallel zur Reaktionszone; der durch ein Schlierenverfahren ermittelte Wert des Kegelöffnungswinkels kann daher der Anströmgeschwindigkeit im Frischgaskegel zugeordnet werden.

4.5.2 Beschreibung der schlierenoptischen Einheit

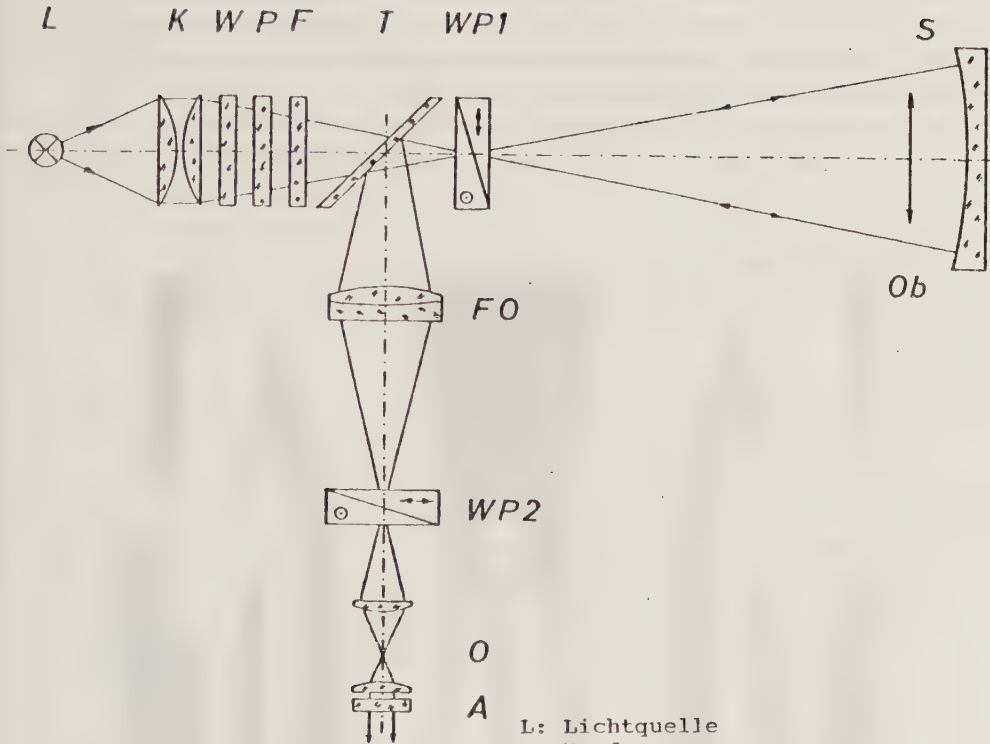
Die schlierenoptische Einheit der Versuchsanlage besteht aus einer Quecksilberdampf Lampe (200 W) mit Transformator-Zündgerät (Typ 5NZ4056, Fa. Siemens), einem Differentialinterferometer (Typ S1, Fa. Schrader), einem Hohlspiegel und einem Planspiegel.

Abbildung 4.6 zeigt den Aufbau und den Strahlengang des Differentialinterferometers.

Beim Durchgang durch ein Phasenobjekt (Ob) wird die Wellenfront deformiert und anschließend durch ein kristalloptisches Element (Wollaston-Prisma WPl) in zwei nur etwas gegeneinander verschobene Wellen aufgespalten, die miteinander zur Interferenz kommen. Dadurch entsteht im Bild eine Helligkeits- bzw. Farbverteilung, die den Gradienten der Objektphase charakterisiert /49/.

Wegen der großen Brennweite des Hohlspiegels ($f = 2 \text{ m}$) muß der Strahlengang aus Platzgründen zwischen Differentialinterferometer und Objekt (Flamme) durch einen zusätzlichen Planspiegel umgelenkt werden.

Die Schlierenbilder werden vor dem Okular (O) mit einer Spiegelreflexkamera über ein Balgengerät aufgenommen. Bei optimaler Ausrichtung des Strahlengangs genügt $1/30 \text{ s}$ Belichtungszeit für einen S/W-Film (22 DIN). Zur endgültigen Bestimmung des Kegelöffnungswinkels werden Positivabzüge im Format 13×18 hergestellt.



- L:** Lichtquelle
- K:** Kondensor
- W:** Wärmeschutzfilter
- P:** Polarisationsfilter
- F:** Farbfilter
- T:** Teildurchlässig verspiegelte Platte
- WP:** Wollastonprisma
- Ob:** Objekt
- S:** Hohlspiegel
- FO:** Achromatisches Objektiv
- O:** Okular
- A:** Polarisationsfilter

Abb. 4.6: Aufbau des Differentialinterferometers /49/

Abbildung 4.7 zeigt eine solche Schlierenaufnahme am Beispiel einer brennstoffreichen Methan/Luft-Flamme. Ausgewertet wird die Zone, in der die Streifen am dichtesten nebeneinanderliegen, d.h. die Änderung der Objektphase maximal ist.



Abb. 4.7: Schlierenaufnahme einer brennstoffreichen Methan/Luft-Flamme mit einem Differentialinterferometer

5. MESSERGEBNISSE

Mit der Apparatur, wie sie in Kapitel 4 beschrieben wurde, läßt sich der experimentelle Teil der Untersuchungen in relativ kurzer Zeit durchführen. Die Ergebnisse, über die in diesem Kapitel berichtet wird, gründen sich auf über 1200 Einzelmessungen.

Um möglichst genaue und reproduzierbare Meßwerte zu garantieren, waren Vorversuche nötig, deren Ergebnisse schließlich Grundlage einer detaillierten Versuchsvorschrift /50/ wurden (Kapitel 5.1 bis 5.3).

5.1 Vorversuche zur Bestimmung von Strömungsgeschwindigkeiten

Mit der Untersuchung von Geschwindigkeitsverteilungen sollte festgestellt werden, ob mit der ausgewählten Gerätekombination Gasdosiereinheit/Düsenbrenner/LDA-System tatsächlich eine Strömungskonfiguration erreicht werden kann, wie sie nach der Düsenbrennermethode erforderlich ist (s. Kapitel 4, Abb. 4.1).

5.1.1 Geschwindigkeitsspektrum innerhalb des Meßvolumens

Das in Kapitel 4.3 beschriebene Verfahren zur Bestimmung der Anströmgeschwindigkeit bezieht sich strenggenommen nur auf die Geschwindigkeit der im Gasstrom mitschwimmenden Partikel. Es kann also nicht von vorneherein ausgeschlossen werden, daß die Partikel schnellen Gasströmungen bzw. schnellen Änderungen von Gasströmungen, z.B. in der Brennerdüse, nicht mehr folgen können. Im folgenden soll jedoch gezeigt werden, daß die Schlupfgeschwindigkeit der Partikel unter den vorliegenden Verhältnissen vernachlässigt werden kann:

Für den Versuch wurde Quarzsand aus den Rückständen einer Schlauchfilteranlage verwendet, deren Korngrößenverteilung, wie in Abb. 5.1 gezeigt, im Bereich zwischen 0.1 und 10 μm liegt und damit die für Doppler-Signale infragekommenden Partikeldurchmesser (s. Kapitel 4.3.3) einschließt.

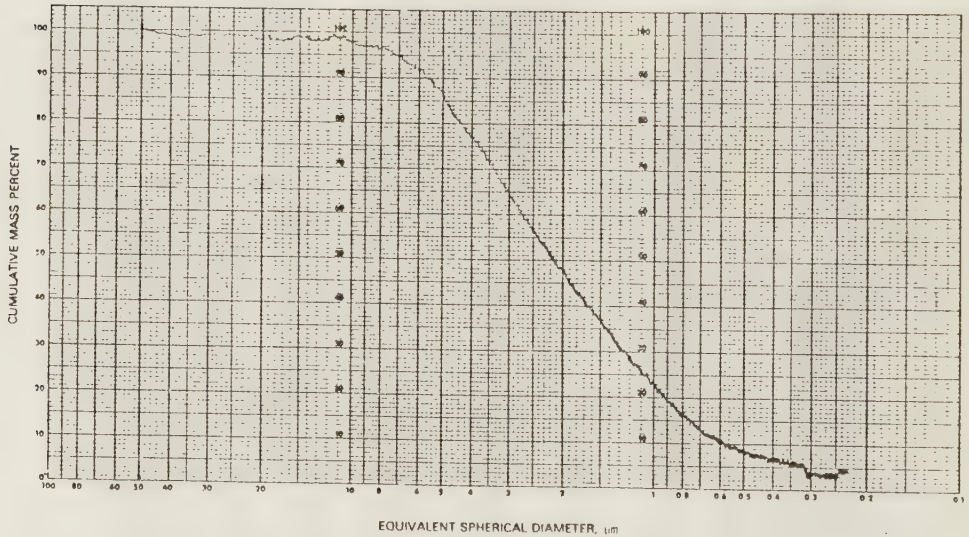


Abb. 5.1: Korngrößenverteilung der für LDA verwendeten Partikel

Bei einem willkürlich festgelegten Luftdurchsatz zeigte der Tracker eine konstante mittlere Geschwindigkeit von 1.3 m/s an. Dieser Mittelwert bezieht sich auf die ausgewerteten Doppler-Signale innerhalb 1 Sekunde.

Anschließend wurde das Dopplerfrequenz-Spektrum, also die Dichte der vom Tracker identifizierten Doppler-Signale in Abhängigkeit von der Frequenz, mit einem Speicheroszillographen aufgenommen. Abb. 5.2 zeigt ein Bild dieses Spektrums zusammen mit einem zusätzlich eingetragenen Geschwindigkeitsbereich, der dem eingestellten Frequenzbereich entspricht.

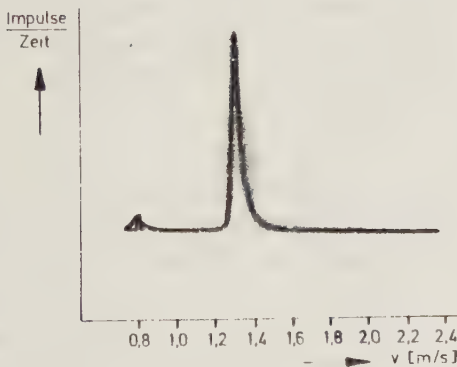


Abb. 5.2: Dopplerfrequenz-Spektrum

Durch Vergleich von Abb. 5.1 mit Abb. 5.2 kann man erkennen, daß die gemessene Gasgeschwindigkeit nicht durch Partikelschlupf verfälscht wird. Andernfalls müßte sich, da die Schlupfgeschwindigkeit vom Korndurchmesser abhängt, bei der Frequenzanalyse eine ähnlich "breite" Verteilung ergeben wie bei der Korngrößenanalyse.

Weiterhin wurde durch den Versuch sichergestellt, daß Gasströme durch die Dosiereinheiten hinreichend konstant gehalten werden können.

5.1.2 Lokale Verteilung der Gasgeschwindigkeiten im ungezündeten Freistrah

Der Düsenbrenner ist zusammen mit der Heißluftkammer an einer Verschiebeeinrichtung angebracht. Mit ihr ist es möglich, den Brenner in allen drei Raumrichtungen auf 0.01 mm genau zu positionieren. Die Auflösungsgüte für lokale Geschwindigkeiten wird daher nur noch von den Abmessungen des Meßvolumens bestimmt (mindestens 0.12 mm, siehe Kapitel 4.4.2).

Die Untersuchung des vollständigen Geschwindigkeitsprofils eines ungezündeten Freistrahls wurde bei Umgebungsbedingungen an einer 6.25 mm-Düse durchgeführt. Strömungsmedium war Luft mit einem Durchsatz von 5.7 Nl/min; dies entspricht einer theoretischen mittleren Geschwindigkeit von 3.48 m/s. In axialer Richtung wurde in Abständen zwischen 1 und 3 mm, in radialer Richtung zwischen 0.1 und 1 mm gemessen.

Als Ergebnis wurden radiale Geschwindigkeitsprofile in mehreren Meßebenen erhalten, die in der jeweiligen Grenzschicht einen parabolischen Verlauf erkennen ließen. Außerhalb der Grenzschicht waren Geschwindigkeiten nicht mehr meßbar.

Verbindet man Orte gleicher Strömungsgeschwindigkeit zu Iso-
tachen, so ergibt sich eine übersichtliche Darstellung, wie sie
in Abb. 5.3 gezeigt wird.

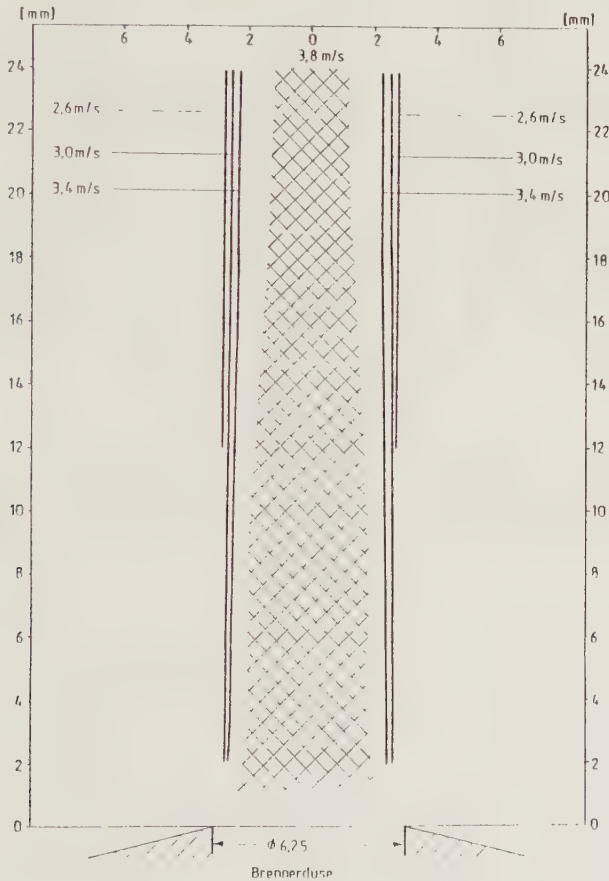


Abb. 5.3: Geschwindigkeitsverteilung im Freistrah

Das schraffierte, sich nach oben hin verjüngende Gebiet zeigt die Kernströmung konstanter Geschwindigkeit (3.8 m/s) an. Für den ungezündeten Freistrahle sind damit die Voraussetzungen an die Brennerdüse erfüllt.

5.1.3 Lokale Verteilung der Gasgeschwindigkeiten im Verbrennungskegel

Wird bei gleichbleibendem Gesamtdurchsatz anstelle von Luft ein brennbares Gemisch eingesetzt und die Flamme gezündet, ändern sich erwartungsgemäß die Strömungsverhältnisse in der Weise, daß die Geschwindigkeiten mit Annäherung an die Verbrennungszone infolge von Temperatur- und Dichtegradienten zunehmen. Dies wird in Abb. 5.4 am Beispiel einer brennstoffarmen H_2/CH_4 -Luft-Flamme gezeigt.

Wichtig ist, daß immer noch ein Kernbereich ($v_0 = 3.7$ m/s) existiert, in dem erwartet werden kann, daß Temperatur und Zusammensetzung noch nicht durch die Verbrennungszone beeinflusst werden. Die im Kernbereich gemessene Geschwindigkeit kann also in Gleichung (4.1) eingesetzt werden.

In Abb. 5.4 fällt auf, daß (in diesem speziellen Fall) Geschwindigkeitsmessungen noch weit in die Nachverbrennungszone hinein und - im Gegensatz zu ungezündeten Freistrahlen - über den Brennerrand hinaus möglich sind. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, daß ungezündetes Gemisch (Quenching-Effekt an der Brennerwand) entweicht und von außen die Strömungskonfiguration stabilisiert. Ansonsten sind die äußeren Isotachen in Abb. 5.4 für Flammengeschwindigkeitsmessungen bedeutungslos.

Ganz anders liegen die Verhältnisse bei einer brennstoffreichen Flamme, wie in Abb. 5.5 gezeigt wird.

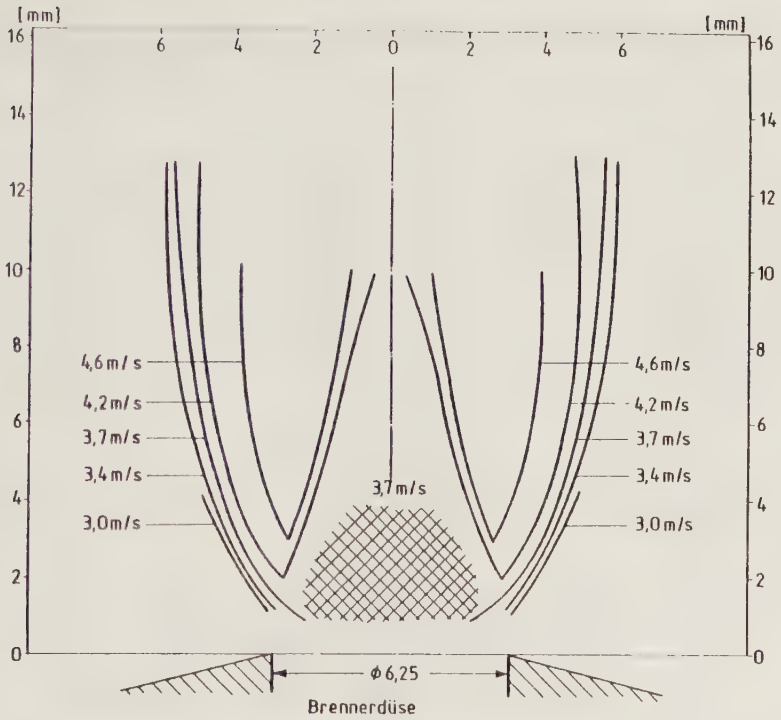


Abb. 5.4: Geschwindigkeitsverteilung in einer Flamme mit der Frischgaszusammensetzung

CH_4 : 3.5 Vol %
 H_2 : 14.1 Vol %
Luft: 82.4 Vol %

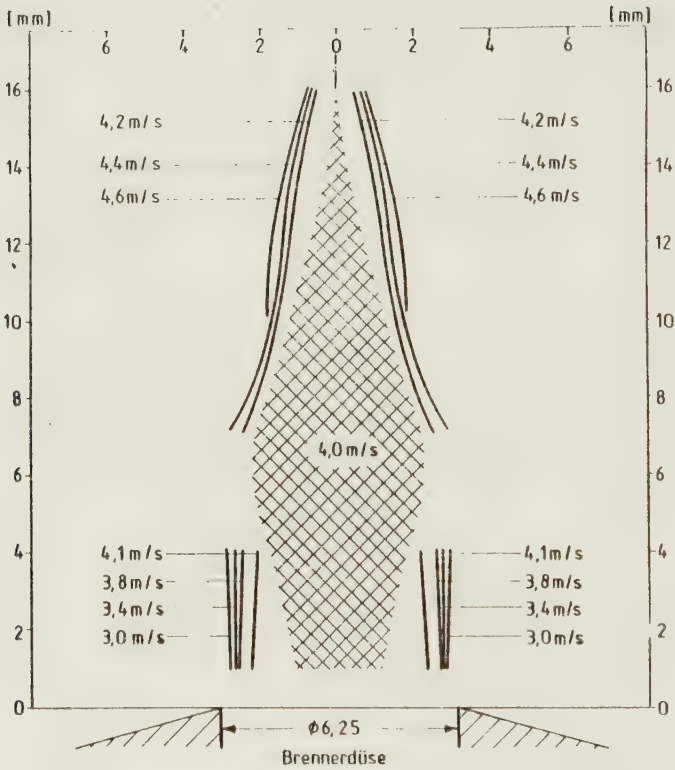


Abb. 5.5: Geschwindigkeitsverteilung in einer Flamme mit der Frischgaszusammensetzung

CH_4 : 6.1 Vol %

H_2 : 24.5 Vol %

Luft: 69.4 Vol %

Die Kernströmung reicht jetzt fast bis an die Flammenspitze, und die Reihenfolge der Isotachen kehrt sich unterhalb von ca. 6 mm Höhe um.

Der Grund hierfür könnte wiederum im Quenching-Effekt liegen: Die zunächst ungezündeten Brenngase vermischen sich im Randbereich mit der umgebenden Luft und bilden damit sehr viel zündwilligere Gemische als dies bei brennstoffarmen Frischgaszusammensetzungen der Fall ist. Die Reaktion könnte also doch noch verspätet einsetzen, so daß sich die Verbrennungszone durch Strömungsgeschwindigkeitsmessungen in diesem Bereich nicht eindeutig identifizieren läßt.

Dies wäre u.U. auch eine Erklärung für die relativ starke Aufheizung der Brennerwand bei Versuchen mit brennstoffreichen Flammen.

5.2 Vorversuche zur Bestimmung der Brennfläche

Bereits mit Abb. 4.7 wurde ein typisches Beispiel einer Schlierenaufnahme gezeigt. Die Kegelflanken sind in diesem Bild über einen weiten Bereich gerade, so daß auch durch die Schlierenoptik die Voraussetzungen an die Düsenströmung bestätigt werden.

Andererseits werden etwaige Störungen der Flammenfront, die z.B. durch nicht-ebene Strömungen oder durch Schwingungen verursacht werden, unmittelbar sichtbar. So fiel schon bei früheren Versuchen mit sehr brennstoffreichen Gemischen ein Knick der Schlierenzone im unteren Bereich der Flamme auf /51/. Deshalb wurde versucht, durch Kombination von LDA und Schlierenoptik eine Erklärung für dieses Phänomen zu finden.

Zunächst sind in Abb. 5.6 Geschwindigkeitsfeld und zugehörige Schlierenphotographie derselben brennstoffarmen Flamme wie in Abb. 5.4 und im selben Maßstab gegenübergestellt (die Asymmetrie des Schlierenbildes ist auf fehlerhafte Bedienung des Differentialinterferometers zurückzuführen). In beiden Bildern ist die Kontur des Frischgaskegels, ansatzweise sogar der Nachverbrennungszone, ähnlich, obwohl es sich um zwei voneinander völlig unabhängige Meßverfahren mit unterschiedlichen Meßgrößen handelt. Dies bestätigt unter anderem auch die Richtigkeit der theoretischen Grundlagen zur Schlierenabbildung in Flammen (Kapitel 4.5.1).

Analog zu Abb. 5.6 zeigt Abb. 5.7 den Vergleich bei einer brennstoffreichen Flamme.

Auch hier sind die Konturen im oberen Teil ähnlich. Dagegen fällt auf, daß der bereits erwähnte Knick in der Schlierenzone genau in den Bereich fällt, in dem Geschwindigkeitsmessungen nicht mehr eindeutig sind bzw. die Reihenfolge der Isotachen umgekehrt wird. Für diesen Effekt wurde bereits in Kapitel 5.1.3 eine Erklärung versucht.

Für die Praxis der Messung von Flammengeschwindigkeiten bedeutet dies, daß nur der Teil oberhalb der Abknickung der Schlierenzone ausgewertet werden darf.

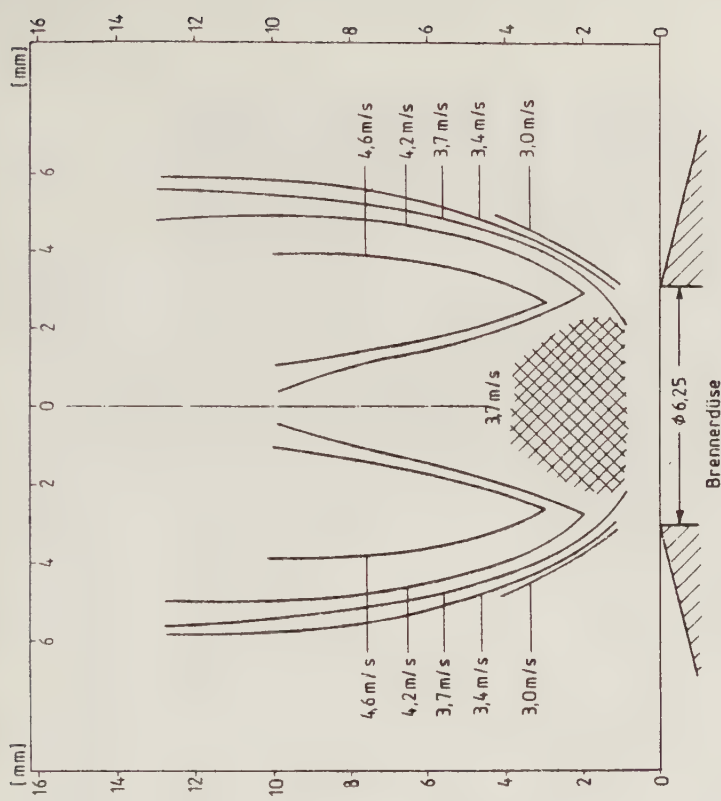


Abb. 5.6: Schlierenaufnahme und Geschwindigkeitsverteilung in einer Flamme mit der Frischgaszusammensetzung

- CH₄ : 3.5 Vol %
- H₂ : 14.1 Vol %
- Luft: 82.4 Vol %

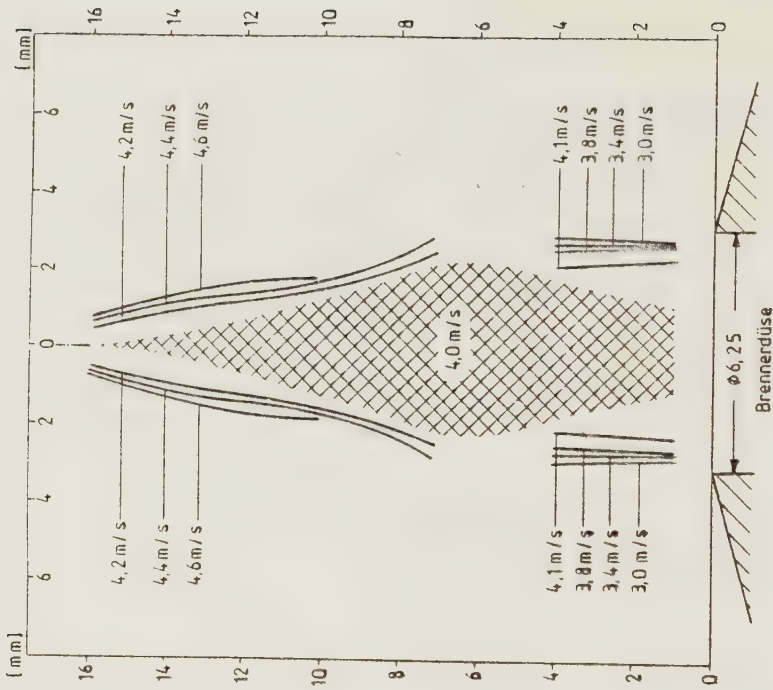


Abb. 5.7: Schlierenaufnahme und Geschwindigkeitsverteilung in einer Flamme mit der Frischgaszusammensetzung

CH_4 : 6.1 Vol %

H_2 : 24.5 Vol %

Luft: 69.4 Vol %

5.3 Folgerungen für die Versuchsdurchführung

Aus den Vorversuchen in Kapitel 5.1 und 5.2 ergeben sich Folgerungen für die Versuchsdurchführung und -auswertung, die aus Gründen einer möglichst hohen Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse beachtet werden müssen. Daneben machen die Konzeption der gesamten Meßapparatur und nicht zuletzt auch sicherheitstechnische Überlegungen eine bestimmte Vorgehensweise erforderlich. Daher wurde eine ausführliche, laufend fortgeschriebene Versuchsanleitung erstellt /50/, um auch anderen Experimentatoren die Möglichkeit zu geben, die Meßanlage zu betreiben.

Für die Versuchsdurchführung besonders wichtig ist

- die Ermittlung von Schätzwerten für die Flammengeschwindigkeit (Brennerauswahl, Versuchsplanung)
- die Eingrenzung des Kernströmungsbereiches im Flammenkegel
- die Auswertung gerader Flammenflanken.

Zur Einschränkung von Wandeinflüssen empfiehlt es sich, eine Brennerdüse mit größtmöglichem Innendurchmesser zu verwenden. Der Volumenstrom sollte so lange erhöht werden, bis sich ein Kegelöffnungswinkel von ca 30° einstellt. Damit erreicht man, daß sich die Brennerwand nicht allzusehr aufheizt und die Winkelbestimmung mit hinreichender Genauigkeit vorgenommen werden kann.

Abb. 5.8 zeigt eine in dieser Hinsicht gut auswertbare Flamme mit den beiden gekreuzten Laserstrahlen für die Geschwindigkeitsmessung.



Abb. 5.3: Düsenbrennerflamme mit Laserstrahlen

5.4 Flammengeschwindigkeiten binärer Brenngas/Luft-Gemische

Die Flammengeschwindigkeiten werden in den folgenden Abbildungen immer in Abhängigkeit von der Brenngaskonzentration (Vol %) im Brenngas/Luft-Gemisch dargestellt. Solche Flammengeschwindigkeitskurven haben in allen Fällen einen ähnlichen Verlauf: Sie steigen bei niedrigen Brenngaskonzentrationen an, durchlaufen frühestens beim stöchiometrischen Brenngas/Luft-Verhältnis ein Maximum und fallen dann wieder ab.

Bedingt durch die Meßmethode ist in sehr brennstoffreichen Gemischen der Übergang Vormischflamme - Diffusionsflamme nicht eindeutig festzulegen. Es ist also möglich, daß auch noch oberhalb der oberen Explosionsgrenze Flammgeschwindigkeiten gemessen werden.

5.4.1 Das System Methan/Luft

Von allen Brenngasen gibt es wohl für Methan die meisten Veröffentlichungen. Stellvertretend dafür werden in Abb. 5.9 die eigenen Meßwerte mit denen von Lindow /12/ und Andrews/Bradley /52/ verglichen.

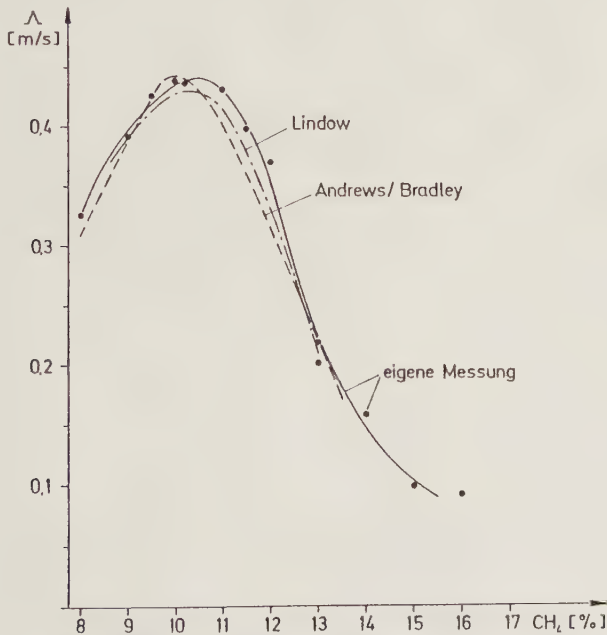


Abb. 5.9: Laminare Flammgeschwindigkeiten von Methan/Luft-Gemischen bei 20° C

5.4.2 Das System Wasserstoff/Luft

Bei Wasserstoff/Luft-Gemischen traten die höchsten Flammgeschwindigkeiten auf, die bisher mit der Versuchsapparatur gemessen wurden. Der Maximalwert (ca. 3.45 m/s, s. Abb. 5.10) liegt im Vergleich zu den Angaben in der Literatur (2.55 bis 3.45 m/s /2/) relativ hoch.

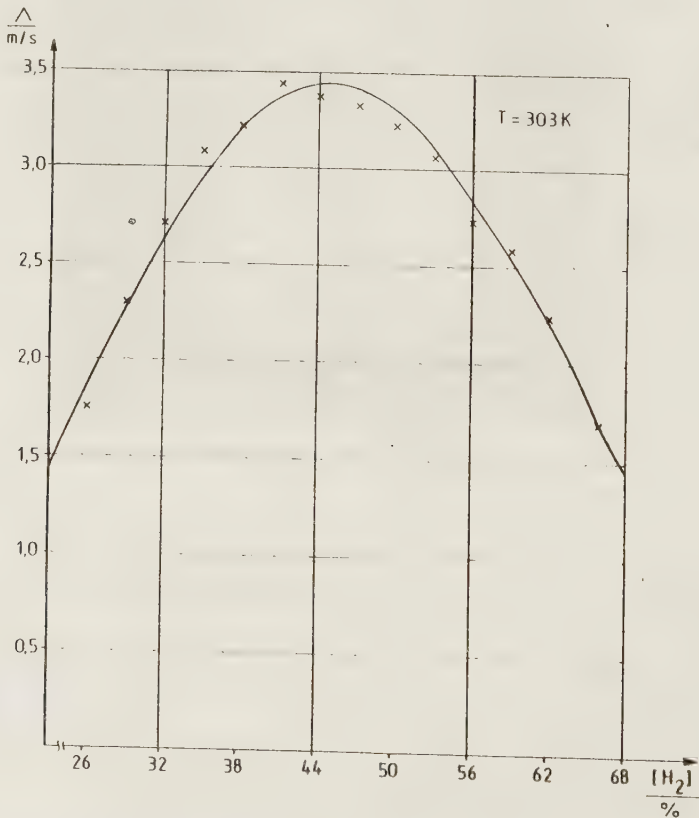
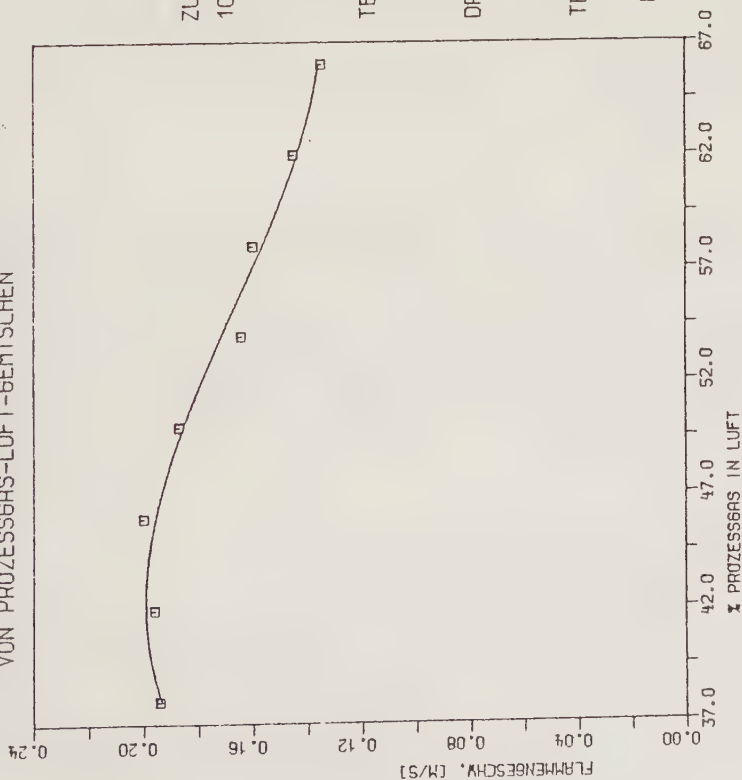


Abb. 5.10: Laminare Flammgeschwindigkeiten von Wasserstoff/Luft-Gemischen bei 20° C

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:
100 % CO

TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.11

5.4.3 Das System Kohlenmonoxid/Luft

Bei Kohlenmonoxid/Luft-Gemischen differieren die in der Literatur veröffentlichten Meßwerte zwischen 0.14 und 0.55 m/s. Dieser Unterschied könnte damit erklärt werden, daß für die experimentellen Untersuchungen Luft mit einer gewissen Restfeuchte verwendet worden ist. Auf die beschleunigende Wirkung von Wasserdampf in Kohlenmonoxidflammen wurde bereits hingewiesen (Kapitel 2.2.1.2).

Die CO-Konzentration, bei der die Flammengeschwindigkeit einen maximalen Wert annimmt, liegt mit ca. 43 Vol % (Abb. 5.11) ähnlich wie bei H₂/Luft-Flammen wesentlich über der stöchiometrischen Konzentration (29.6 Vol %). Bei stöchiometrischer Zusammensetzung des CO/Luft-Gemisches konnten überhaupt keine Flammen realisiert werden.

5.5 Flammengeschwindigkeiten polynärer Brenngas/Luft-Gemische

Die Flammengeschwindigkeitskurven polynärer Gemische werden im folgenden - wie schon bei Abbildung 5.11 - durch Polynome 5. Grades, deren Parameter durch Regression den Meßwerten angeglichen worden sind, mittels eines Zeichenprogrammes /53/ dargestellt.

5.5.1 Das System Methan/Wasserstoff/Luft

Aufbauend auf die Versuche mit Methan/Luft-Gemischen diente der stufenweise Ersatz von Methan durch Wasserstoff zunächst zur Funktionsprüfung aller vorhandenen Düsenbrenner und zur Vorabschätzung von Prozeßgasen ähnlicher Zusammensetzung. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.12 - 5.16 enthalten.

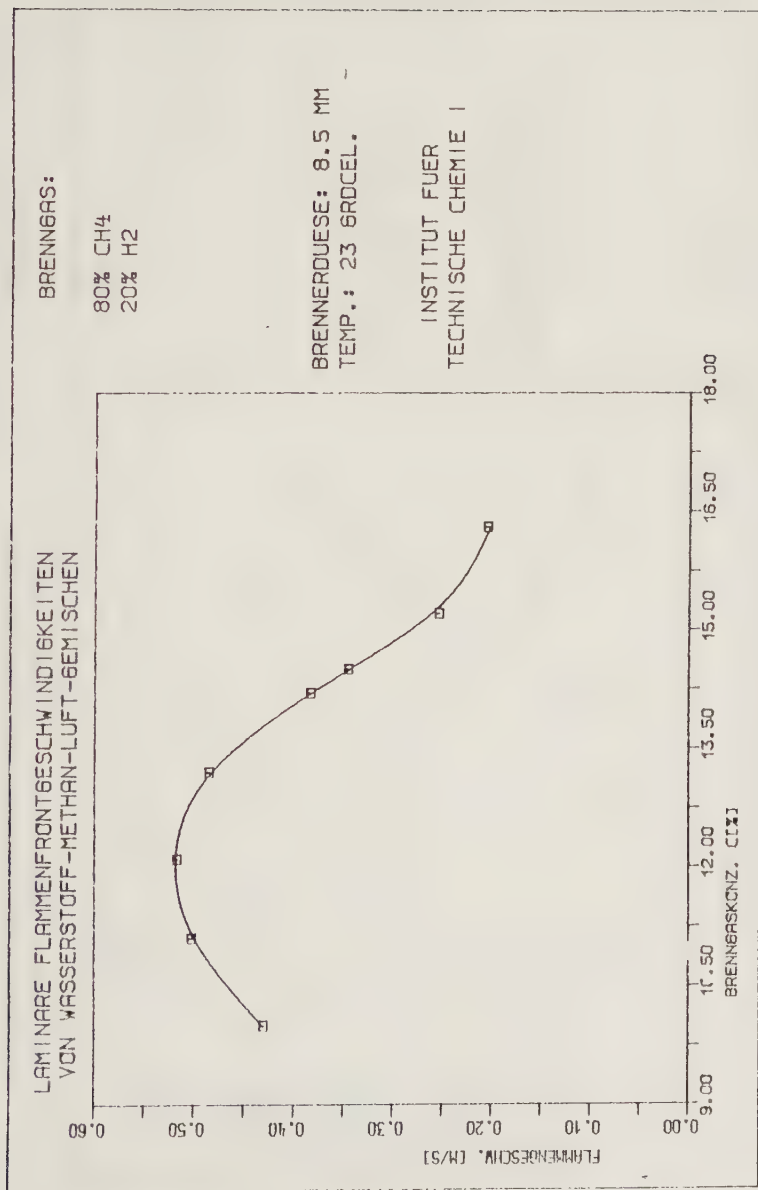


Abb. 5.12

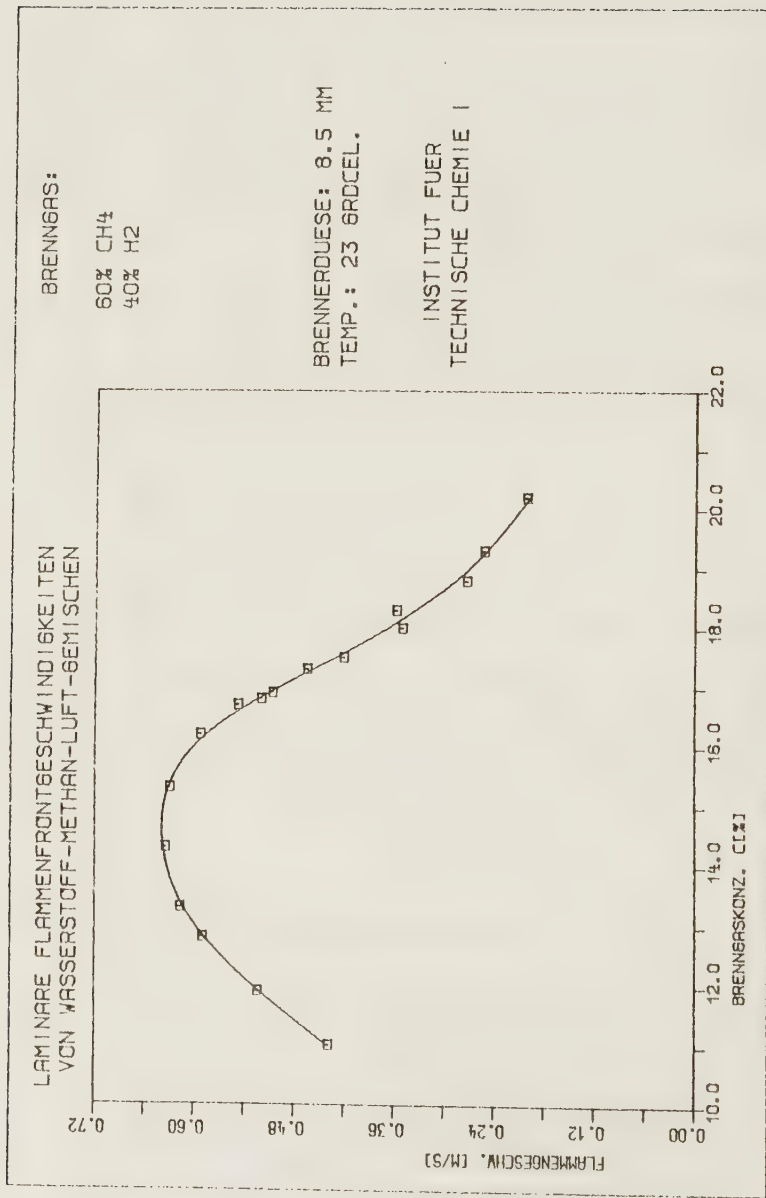


Abb. 5.13

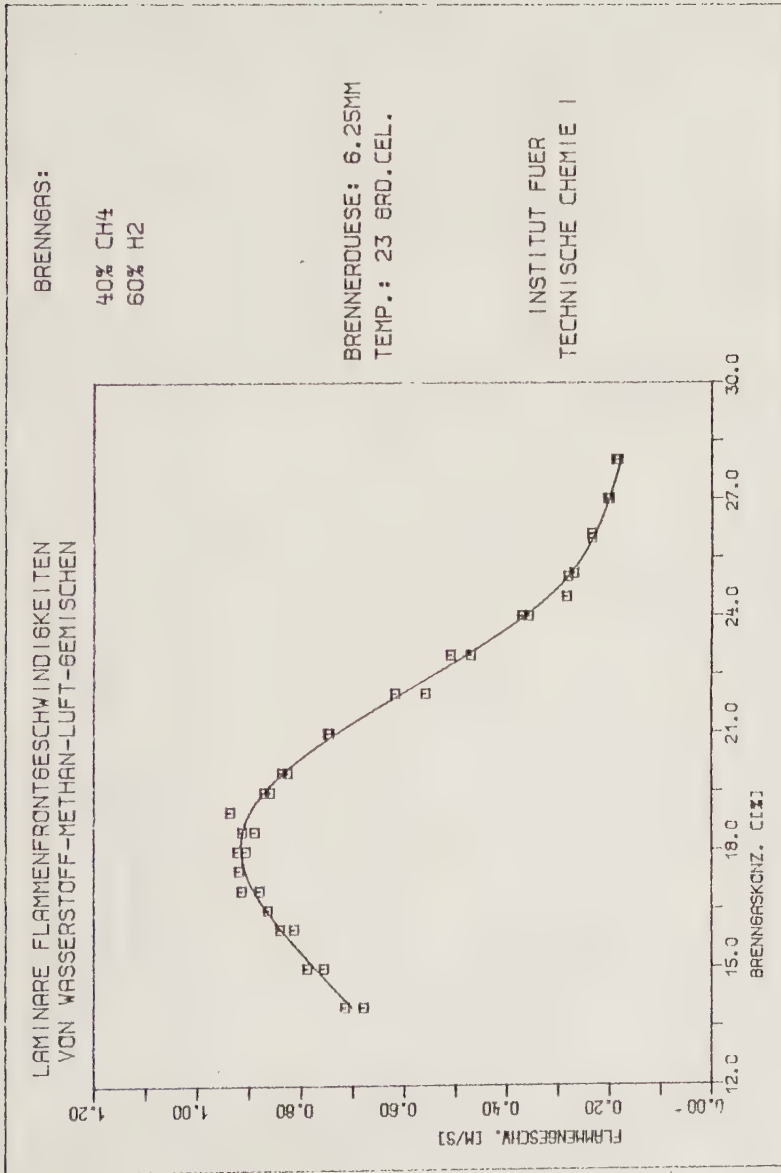


Abb. 5.14

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON WASSERSTOFF-METHAN-LUFT-GEMISCHEN

BRENNGAS:

30% CH₄

70% H₂

BRENNERQUESE: 6.25MM
TEMP.: 23 GRD.CEL.

INSTITUT FUER
TECHNISCHE CHEMIE I

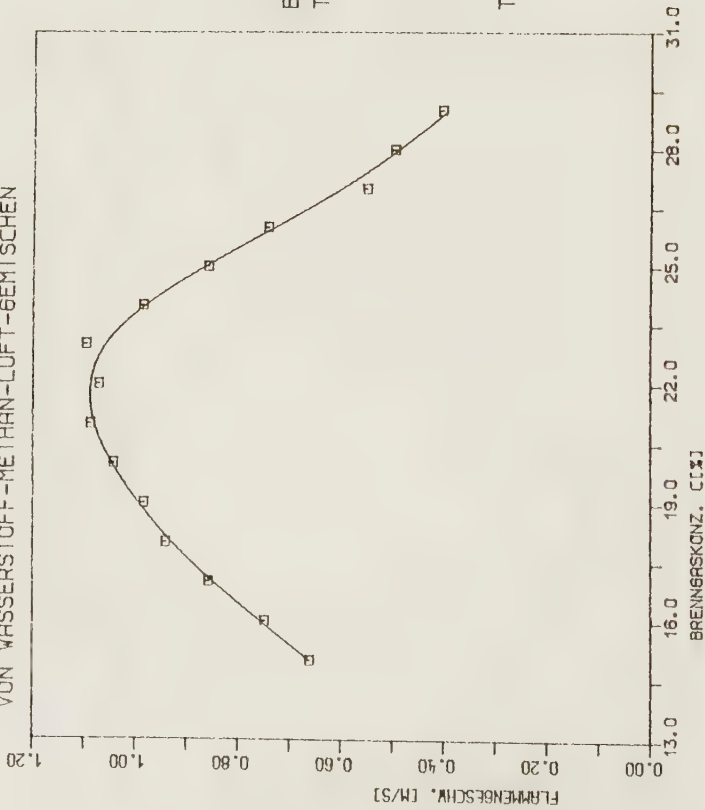


Abb. 5.15

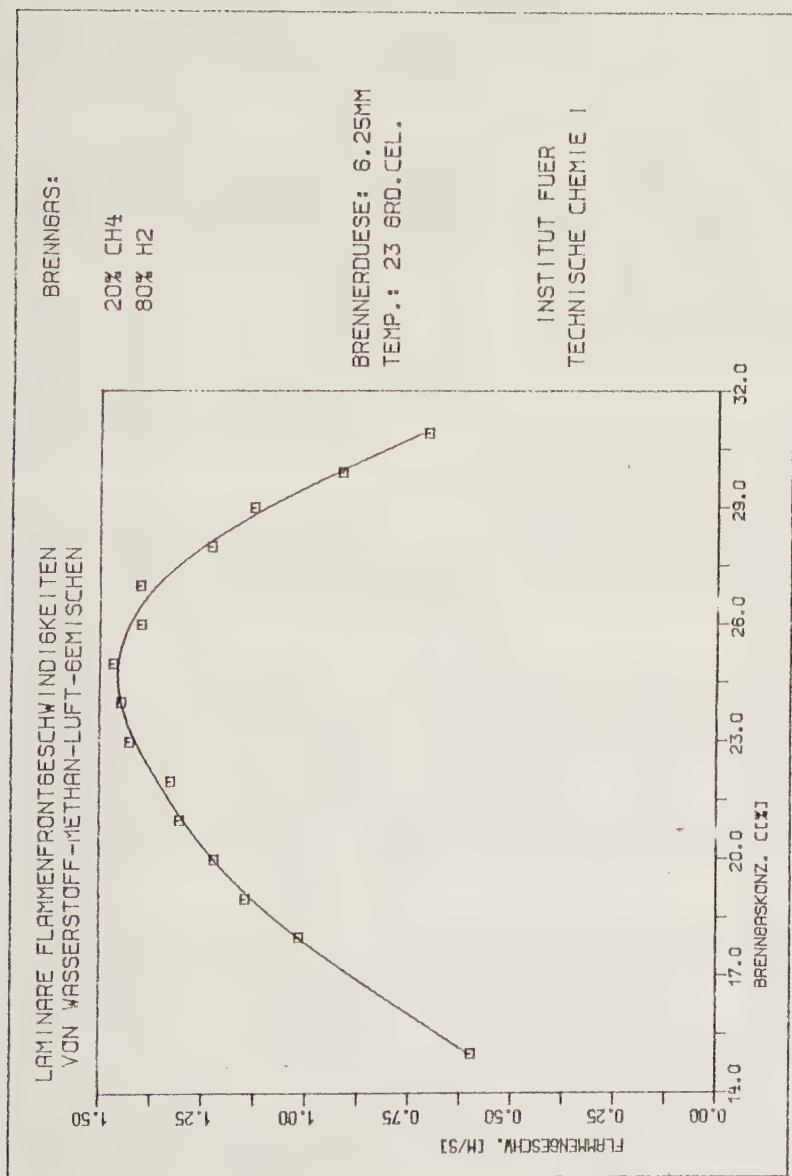


Abb. 5.16

5.5.2 Prozeßgase in Kohlevergasungsanlagen

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen eines Forschungsvorhabens /1, 54/ durchgeführt, das die Untersuchung spezieller Prozeßgase in ihren Mischungen mit Luft zum Ziel hatte.

Die Zusammensetzung dieser Prozeßgase und die zugehörigen Temperaturen wurden in einer Notiz von der Fa. Interatom /55/ vorgegeben. Sie beziehen sich auf:

- eine Anlage zur hydrierenden Vergasung von Braunkohle (HKV-Anlage)
- eine Kombianlage zur Steinkohlevergasung (HKV-WKV-Kombianlage)

Aus meßtechnischen Gründen wurden die Prozeßgas-Zusammensetzungen dadurch vereinfacht, daß Gaskomponenten mit geringem Anteil (<1 Vol %) anderen, ähnlichen Gasen zugeschlagen wurden.

Ausgangspunkt des PNP-Sicherheitssofortprogrammes /1/ war eine mögliche Explosion energiereicher Gas/Luft-Gemische, die sich nach Bruch einer Leitung oder eines Behälters bilden können. Bei schlagartigem Auftreten eines Lecks wird wegen adiabatischer Expansion die Temperatur der austretenden Gase wesentlich unter die ursprüngliche Betriebstemperatur absinken. Eine weitere Abkühlung erfolgt durch Vermischung mit der Umgebungsluft.

Wenn entsprechende Berechnungen ergaben, daß die Temperaturen zündfähiger Prozeßgas/Luft-Gemische dann noch höher als 25°C liegen, wurden die betreffenden Gemische auch bei höheren Temperaturen untersucht.

Die Meßergebnisse sind, soweit sie nicht schon in den vorhergehenden Abschnitten behandelt wurden, in den Abb. 5.17 bis 5.26 dargestellt.

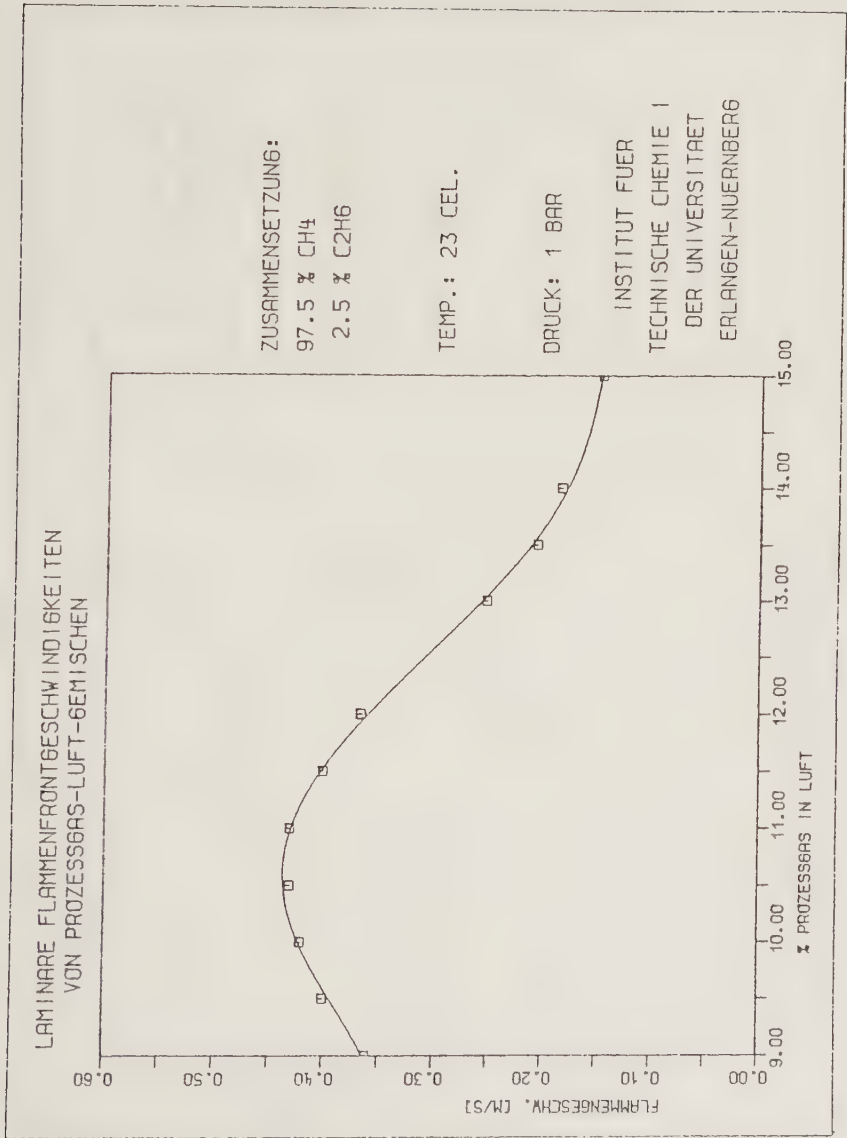


Abb. 5.17

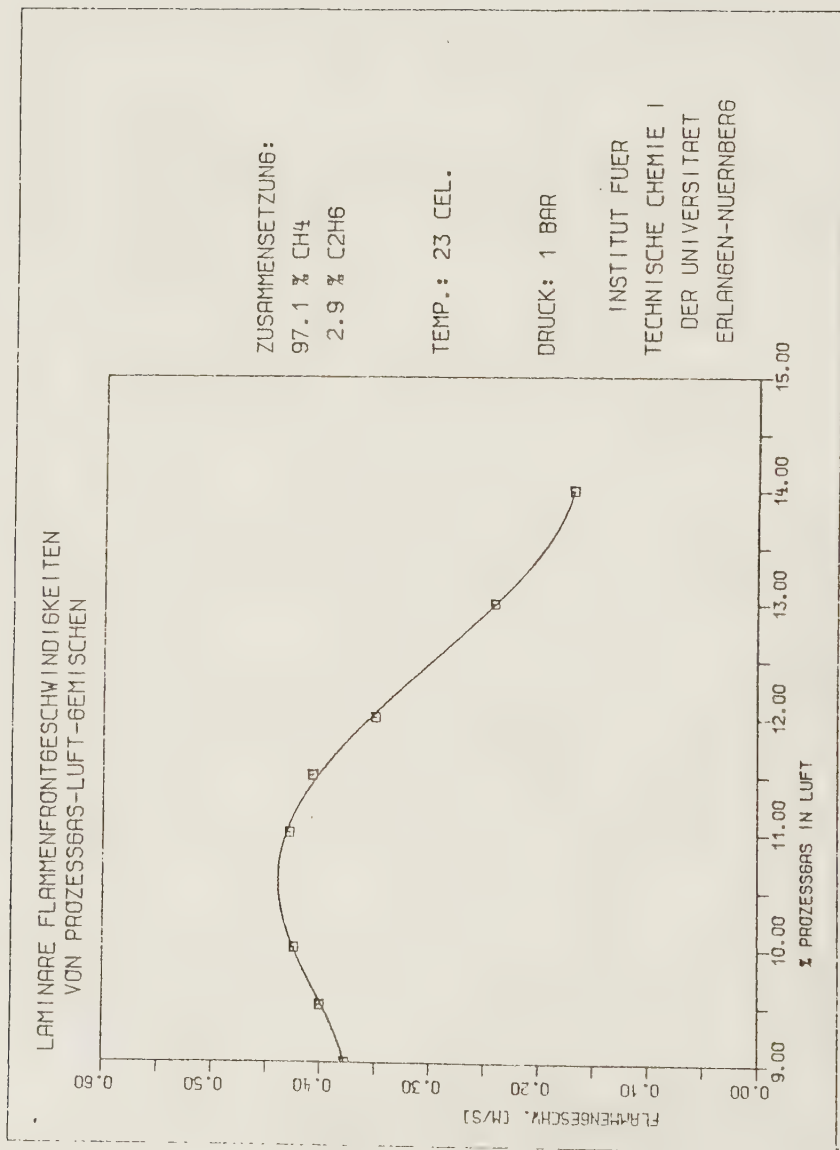
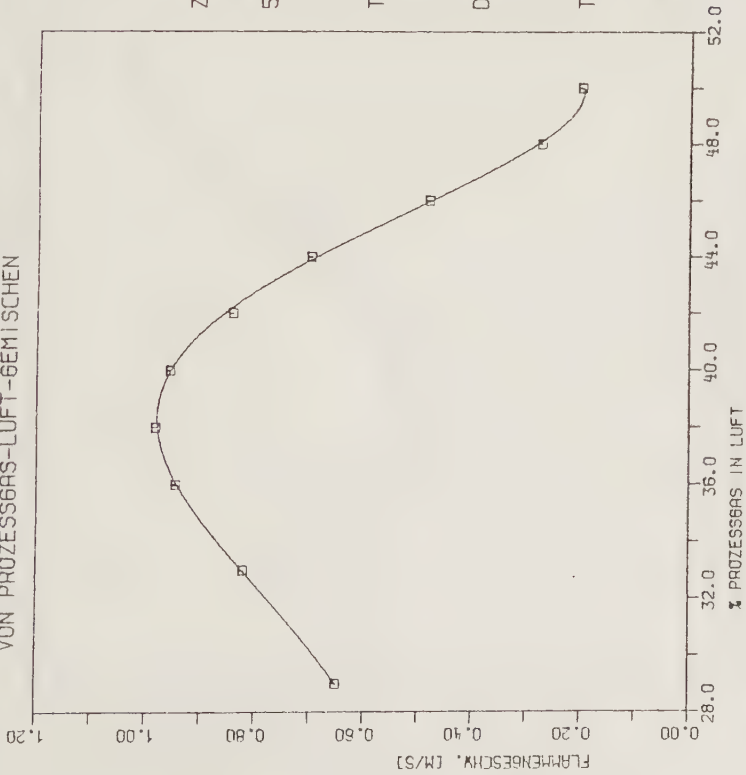


Abb. 5.18

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:

6.8 % CH₄

58.7 % H₂ 32.0 % CO₂

2.5 % CO

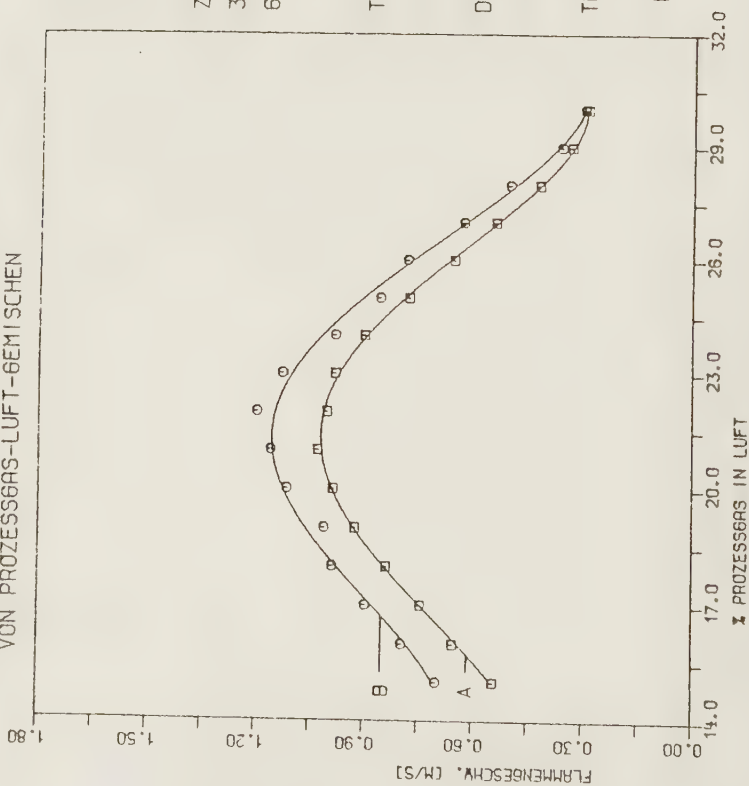
TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.19

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:

30.6 % CH₄

61.2 % H₂ 3.8 % H₂O

4.4 % CO

TEMP.: (A) 30 CEL.

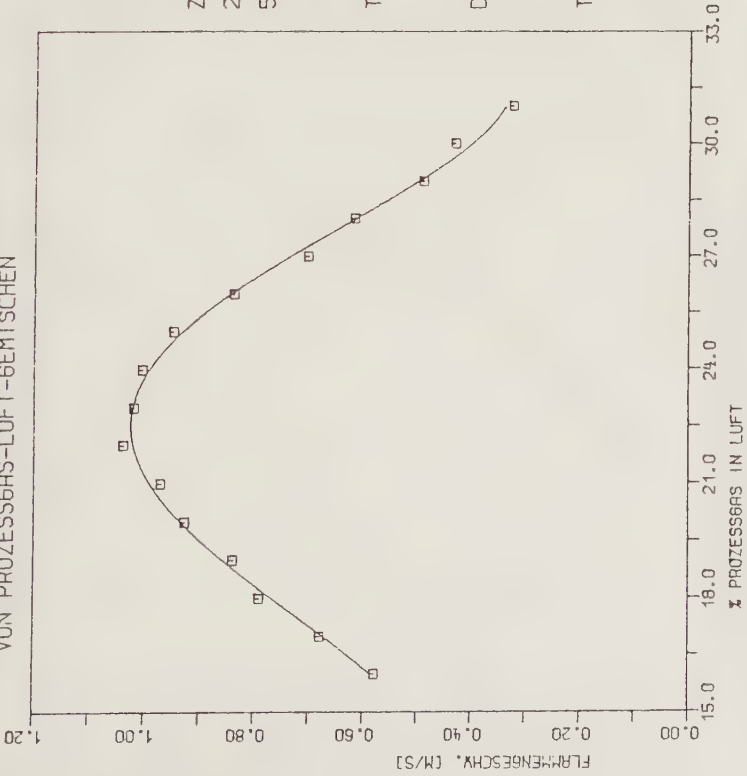
(B) 50 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FUER
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITAET
ERLANGEN-NUERNBERG

Abb. 5.20

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:
28.3 % CH₄
56.3 % H₂ 11.5 % H₂O
3.9 % CO

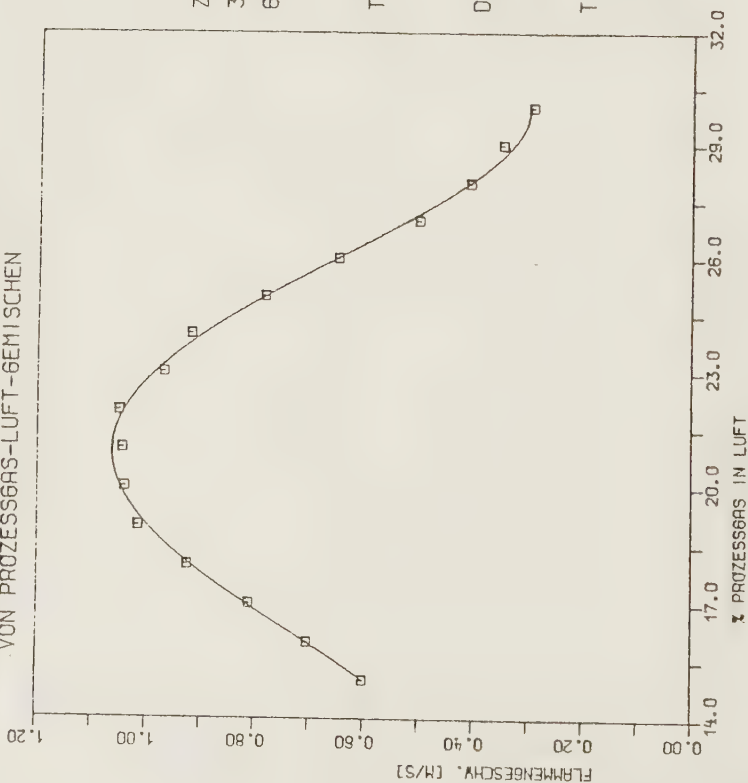
TEMP.: 40 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.21

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:

31.8 % CH₄

63.7 % H₂

4.5 % CO

TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.22

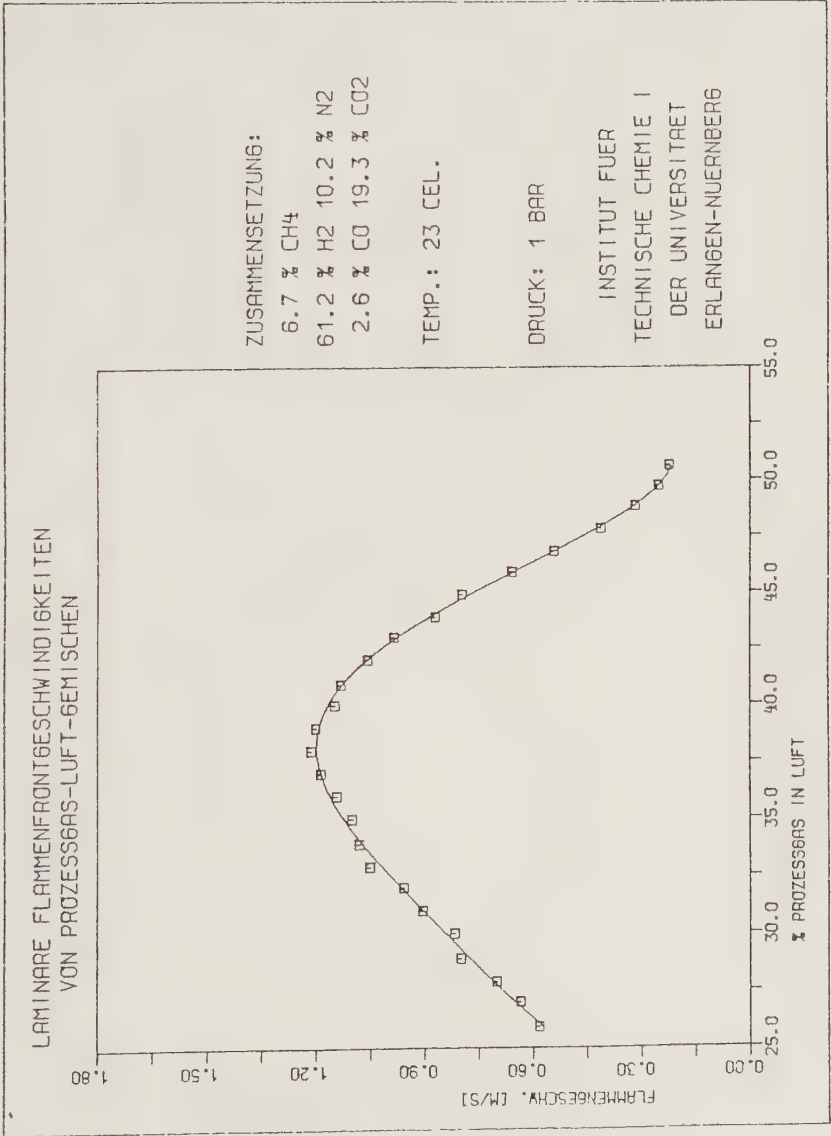
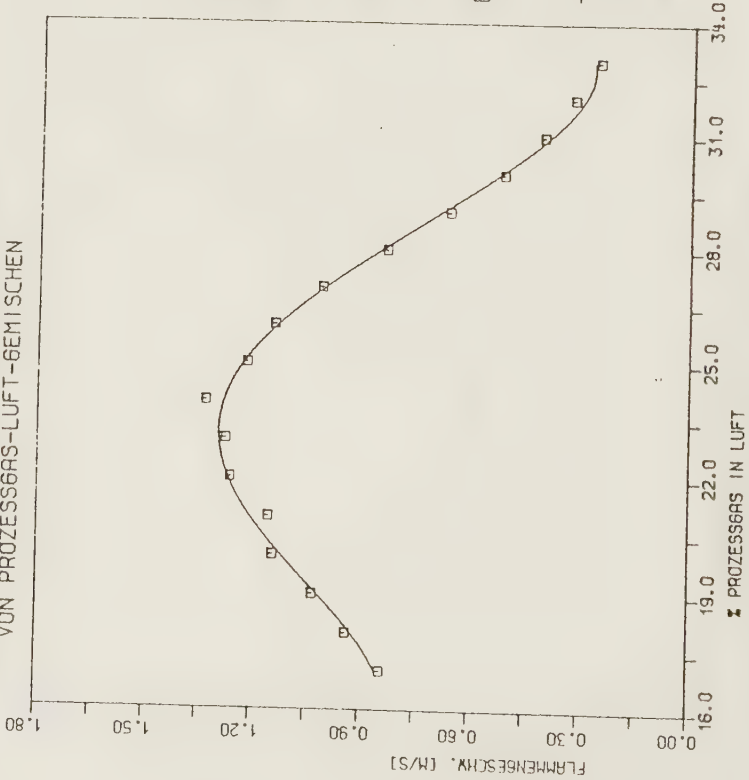


Abb. 5.23

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:
22.9 % CH₄
68.1 % H₂ 5.0 % N₂
4.0 % CO

TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.24

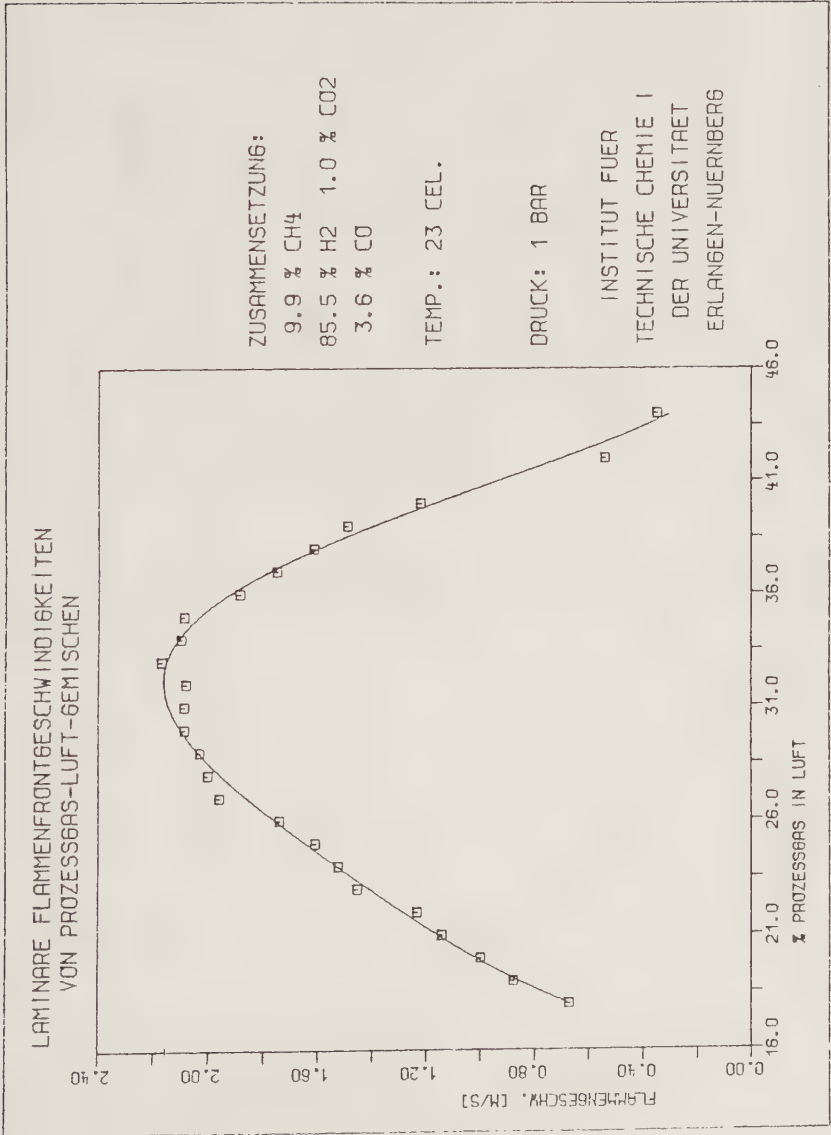
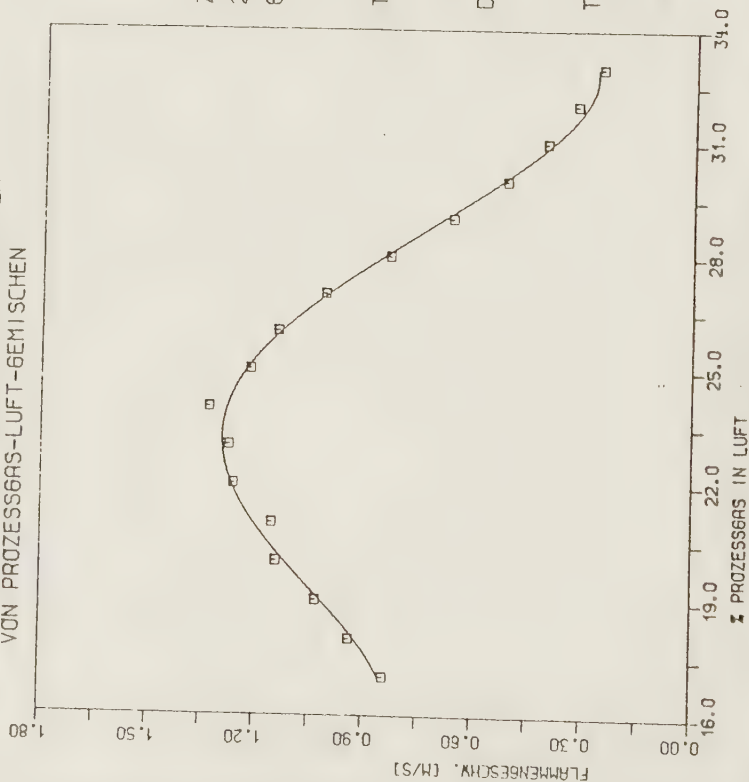


Abb. 5.25

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:
22.9 % CH₄
68.1 % H₂ 5.0 % N₂
4.0 % CO

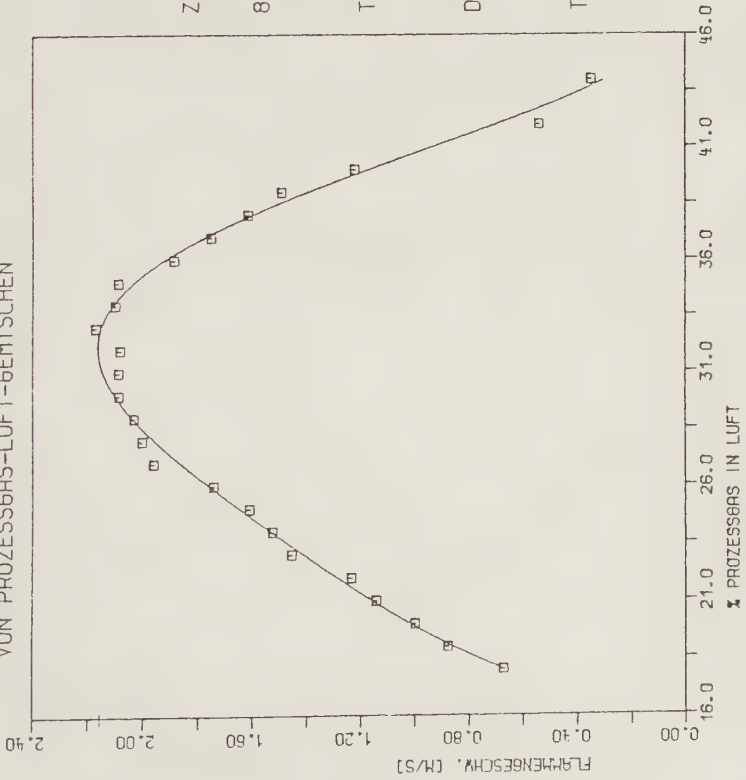
TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.24

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:

9.9 % CH₄

85.5 % H₂ 1.0 % CO₂

3.6 % CO

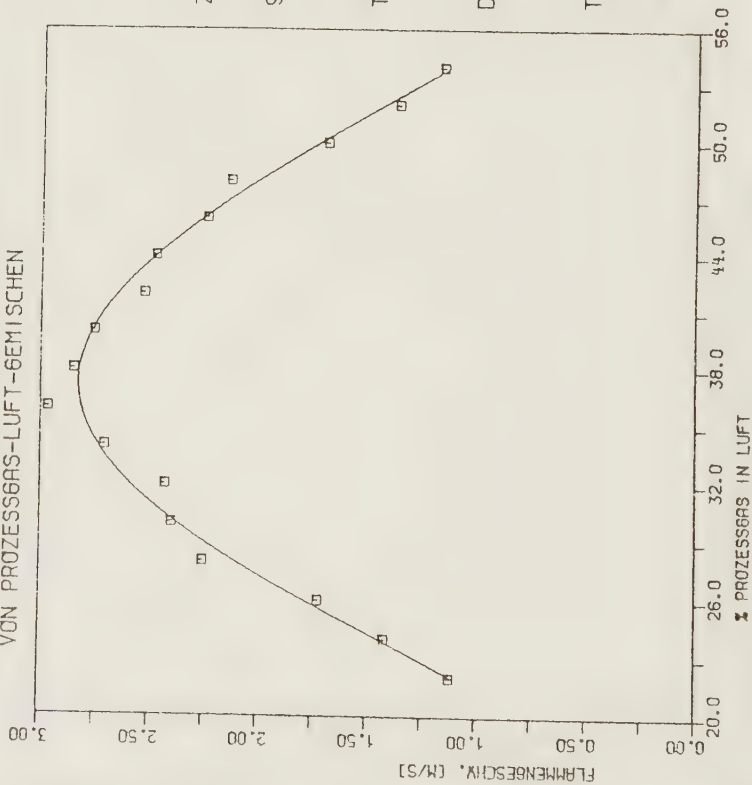
TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.25

LAMINARE FLAMMENFRONTGESCHWINDIGKEITEN
VON PROZESSGAS-LUFT-GEMISCHEN



ZUSAMMENSETZUNG:
4.1 % CH₄
93.9 % H₂ 0.4 % CO₂
1.5 % CO

TEMP.: 23 CEL.

DRUCK: 1 BAR

INSTITUT FÜR
TECHNISCHE CHEMIE I
DER UNIVERSITÄT
ERLANGEN-NÜRNBERG

Abb. 5.26

5.6 Zusammenstellung wichtiger Meßwerte

Da wegen der Vielzahl der Messungen nicht jeder Meßwert einzeln angeführt werden kann, sind in den folgenden Tabellen die wichtigsten Ergebnisse aus Kapitel 5.4 und 5.5 zusammengestellt. Dazu gehören die Zusammensetzung eines Prozeßgases, die Vorwärmtemperatur T_0 , die maximale laminare Flammengeschwindigkeit $\Lambda_{\max}$ und die zugehörige Prozeßgaskonzentration $x(\Lambda_{\max})$ in Luft.

Tabelle 5.1 enthält alle untersuchten Prozeßgase ohne Inertgasanteil, Tabelle 5.2 alle mit Inertgasanteil. In Tabelle 5.1 sind zusätzlich Stoffwerte angegeben, die in Kapitel 5.7 im Zusammenhang mit Einflußgrößen noch benötigt werden; das sind der (stöchiometrische) Luftbedarf $L(\text{m}^3\text{Luft}/\text{m}^3\text{Brenngas})$, die Brenngasdichte ρ_B und die Temperaturleitzahl $a = \frac{\lambda}{c_P \rho}$ des Gesamtgemisches bei maximaler Flammengeschwindigkeit.

Prozeßgase mit sehr hohem Wasserdampfgehalt konnten nicht untersucht werden, da sich die Flammen nur sehr schwer entzünden bzw. stabilisieren ließen.

Abb. Nr.	Zusammensetzung des Prozeßgases						L	$\frac{\lambda_{\max}}{\text{m/s}}$	$\frac{\kappa(\lambda_{\max})}{\text{Vol } \%}$	$\frac{T_0}{K}$	$\frac{\kappa(\lambda_{\max})}{\text{Vol } \%}$	$\frac{\lambda_{\max}}{\text{m/s}}$	$\frac{\rho_B}{\text{kg/m}^3}$	a $10^{-5} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$
	$\frac{[\text{CH}_4]}{\text{Vol } \%}$	$\frac{[\text{H}_2]}{\text{Vol } \%}$	$\frac{[\text{CO}]}{\text{Vol } \%}$	$\frac{[\text{C}_2\text{H}_6]}{\text{Vol } \%}$	$\frac{T_0}{K}$	$\frac{\kappa(\lambda_{\max})}{\text{Vol } \%}$								
5.13	97.1			2.9	296	10.6	9.73	0.44	10.6	296	10.6	0.44	0.679	1.99
5.17	97.5			2.5	296	10.6	9.70	0.44	10.6	296	10.6	0.44	0.676	1.99
5.9	100.0				296	10.4	9.52	0.45	10.4	296	10.4	0.45	0.662	2.00
5.12	80.0	20.0			296	12.0	8.10	0.52	12.0	296	12.0	0.52	0.546	2.16
5.13	60.0	40.0			296	14.6	6.67	0.64	14.6	296	14.6	0.64	0.430	2.41
*	40.0	40.0	20.0		296	18.3	5.24	0.84	18.3	296	18.3	0.84	0.529	2.58
5.14	40.0	60.0			296	18.0	5.24	0.92	18.0	296	18.0	0.92	0.314	2.77
5.22	31.8	63.7	4.5		296	20.9	4.65	1.06	20.9	296	20.9	1.06	0.315	2.95
*	30.0	30.0	40.0		296	21.3	4.52	0.90	21.3	296	21.3	0.90	0.685	2.53
5.15	30.0	70.0			296	21.7	4.52	1.09	21.7	296	21.7	1.09	0.257	3.09
*	20.0	20.0	60.0		296	25.3	3.81	0.96	25.3	296	25.3	0.96	0.841	2.46
5.16	20.0	80.0			296	24.7	3.81	1.46	24.7	296	24.7	1.46	0.199	3.43
5.11			100.0		296	42.2	2.38	0.20	42.2	296	42.2	0.20	1.15	1.94
5.10		100.0			296	42.8	2.38	3.40	42.8	296	42.8	3.40	0.083	5.28

Tab. 5.1: Auswertung von Prozeßgasen ohne Inertgasanteil
(*: Einzelmessung)

Abb. Nr.	Zusammensetzung des Prozeßgases								$\frac{x(\lambda_{\max})}{Vol\ \%}$	$\frac{\Lambda_{\max}}{m/s}$
	$\frac{[CH_4]}{Vol\ \%}$	$\frac{[H_2]}{Vol\ \%}$	$\frac{[CO]}{Vol\ \%}$	$\frac{[C_2H_5]}{Vol\ \%}$	$\frac{[N_2]}{Vol\ \%}$	$\frac{[CO_2]}{Vol\ \%}$	$\frac{[H_2O]}{Vol\ \%}$	$\frac{T_O}{K}$		
5.19	6.3	58.7	2.5			32.0		296	38.2	0.98
5.20	30.6	61.2	4.4				3.8	303	21.4	1.01
5.20	30.6	61.2	4.4				3.8	323	21.4	1.16
5.21	28.3	56.3	3.9				11.5	313	22.7	1.02
5.23	6.7	61.2	2.6		10.2	19.3		296	38.0	1.20
5.24	22.9	68.1	4.0		5.0			296	23.2	1.29
5.25	9.9	85.5	3.6			1.0		296	32.1	2.15
5.26	4.1	93.9	1.5			0.4		296	37.4	2.82

Tab. 5.2: Auswertung von Prozeßgasen mit Inertgasanteil

5.7 Einflußgrößen auf die Flammengeschwindigkeit

Aus sicherheitstechnischer Sicht wichtig ist, wie Flammengeschwindigkeiten "von außen" beeinflußt werden können. Zu diesen Einflußgrößen gehören die Brenngaskonzentration in Luft, die Brenngaszusammensetzung, die Vorwärmtemperatur und der Inertgasanteil.

Soweit die Informationen aus den Versuchen der vorhergehenden Abschnitte nicht ausreichen, wurden weitere, gezielte Messungen durchgeführt. Deren Ergebnisse wurden, wie bereits in Kapitel 2 angekündigt, mit Beziehungen meist empirischer Art aus der Literatur verglichen.

5.7.1 Einfluß der Brenngaskonzentration in Luft

Der Einfluß der Brenngaskonzentration x_B wurde graphisch bereits durch die Art der Darstellung in den Abbildungen 5.10 bis 5.26 gezeigt. Daneben besteht oft (z.B. für Interpolationen) die Notwendigkeit, eine Flammengeschwindigkeitskurve ($\Lambda = f(x_B)$) durch eine Näherungsfunktion zu beschreiben, deren Parameter von der Brenngaszusammensetzung abhängen.

Während Kwiatkowski /56/ für Erdgas/Luft-Gemische einen Polynomansatz lediglich 2. Grades verwendet, haben sich zur graphischen Darstellung der vorliegenden Meßergebnisse, wie schon erwähnt, Polynome 5. Grades bewährt. Exponentialansätze in der Form

$$\Lambda = z x_B^m (1 - x_B)^n \quad (5.1)$$

eignen sich besonders, wenn die Temperaturabhängigkeit berücksichtigt werden soll (Kapitel 5.7.3). Für CH_4 , H_2 und CO (jeweils

in Luft) ergaben sich die in Tabelle 5.3 angeführten Parameterwerte in Gleichung (5.1) bei 303 K.

Brenngas	$\frac{z}{m/s}$	m	n
CH ₄	$2.750 \cdot 10^{31}$	22.67	199.0
H ₂	56.14	1.811	2.372
CO	$7.529 \cdot 10^{31}$	49.86	53.25

Tab. 5.3: Parameter der Gleichung $\Lambda = z \cdot x_B^m (1 - x_B)^n$
T = 303 K

5.7.2 Einfluß der Brenngaszusammensetzung

Um den Einfluß der Brenngaszusammensetzung zu beschreiben, beschränken sich graphische Darstellungen und empirische Beziehungen auf maximale Flammengeschwindigkeiten. So ergeben sich Diagramme der Art, wie es in Abbildung 5.27 mit den Werten für die ternären Gemische CH₄/H₂/Luft aus Tabelle 5.1 gezeigt wird.

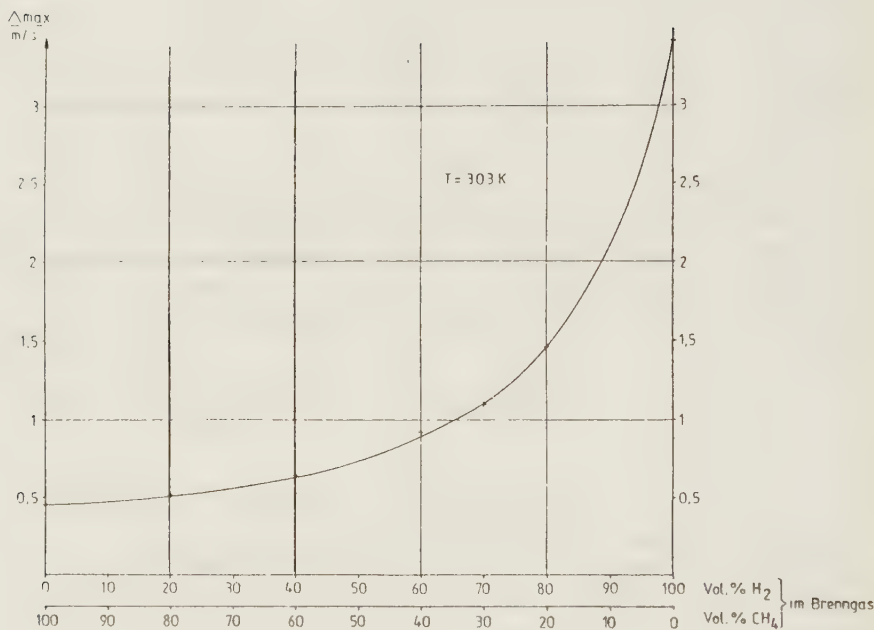


Abb. 5.27: Maximale Flammgeschwindigkeiten von CH_4/H_2 -Gemischen in Luft

Die Literaturübersicht von Batheja /2/ enthält eine Vielzahl derartiger Systeme, ohne daß es jedoch gelungen wäre, für jede mögliche Kombination von Brenngasen bzw. Inertgasen die maximalen Flammgeschwindigkeiten zu ermitteln. Auch empirische Bestimmungsgleichungen sind wegen des komplexen Zusammenwirkens mehrer-

rer Reaktionsteilnehmer, wie in Kapitel 2 dargelegt wurde, höchstens bei ternären Gemischen (Kurvenverlauf in Abbildung 5.27) denkbar.

Trotzdem versucht Gebert /60, 61/ eine Mischungsregel aufzustellen, nach der die Flammengeschwindigkeit eines Gasgemisches additiv aus denen der Einzelkomponenten zusammengesetzt wird:

Zur Charakterisierung der Gasgemische wird lediglich der Luftbedarf L benutzt, also eine Stoffgröße, die sich additiv aus den Eigenschaften der Einzelgase ergibt. Für Brenngasgemische gleicher Dichte ρ_B soll sich dann eine lineare Abhängigkeit der Flammengeschwindigkeit vom Luftbedarf ergeben, was sich durch experimentelle Untersuchungen im System $\text{CH}_4/\text{H}_2/\text{CO}$ in /60/ zu bestätigen scheint. Benutzt man nun die Beziehung

$$\Lambda \sim \sqrt{\frac{1}{\rho}} \quad (5.2)$$

aus der Wärmetheorie (Kapitel 2.2.1.1) und setzt näherungsweise

$$\Lambda \sim \sqrt{\frac{1}{\rho_B}} \quad (5.3)$$

so sollte dann die Auftragung des Produktes $\Lambda_{\max} \cdot \sqrt{\rho_B}$ gegen den Luftbedarf eine Gerade ergeben.

Um diese Mischungsregel zu überprüfen, wurden eigene Meßergebnisse aus Tabelle 5.1 verwendet. Abbildung 5.28 zeigt deutlich, daß der Kurvenverlauf keineswegs durch eine Gerade oder eine andere Funktion beschrieben werden kann.

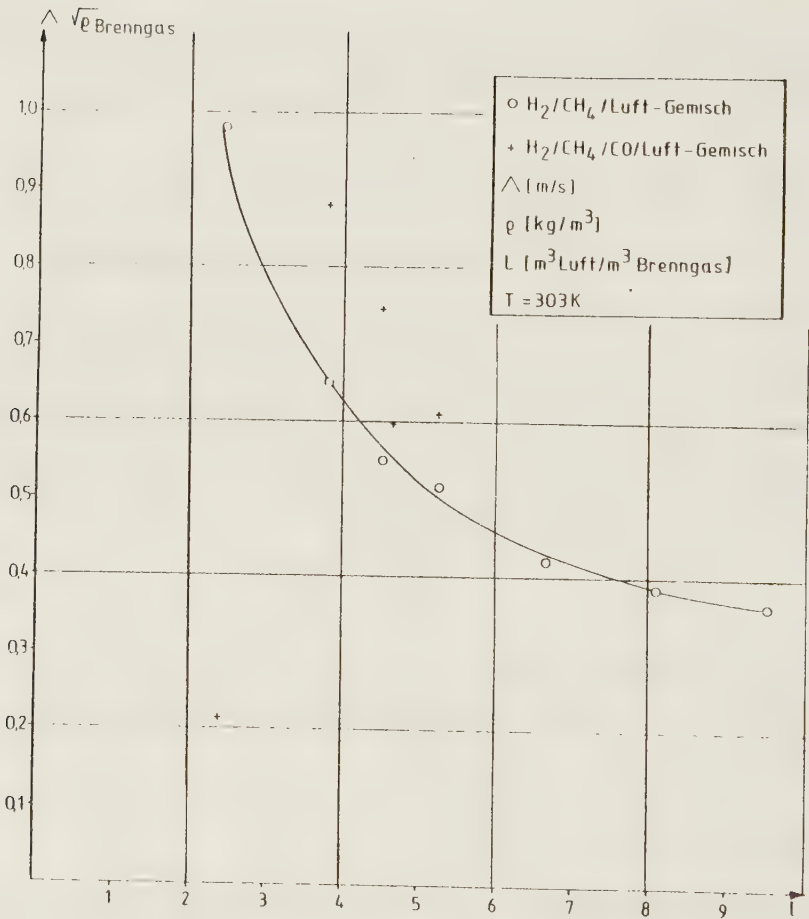


Abb. 5.28: Darstellung der maximalen Flammgeschwindigkeiten aus Tabelle 5.1 nach der Vorschrift von Gebert /61/

In Abbildung 5.28 fallen insbesondere die mit "+" gekennzeichneten CO-haltigen Gemische heraus.

Wegen Gleichung (2.17) kann man bestenfalls die Flammengeschwindigkeiten mit der Temperaturleitzahl des Gesamtgemisches durch $\Lambda_{\max}/\sqrt{a}$ kombinieren. Mit einem geeigneten logarithmischen Maßstab erhält man dann Abbildung 5.29:

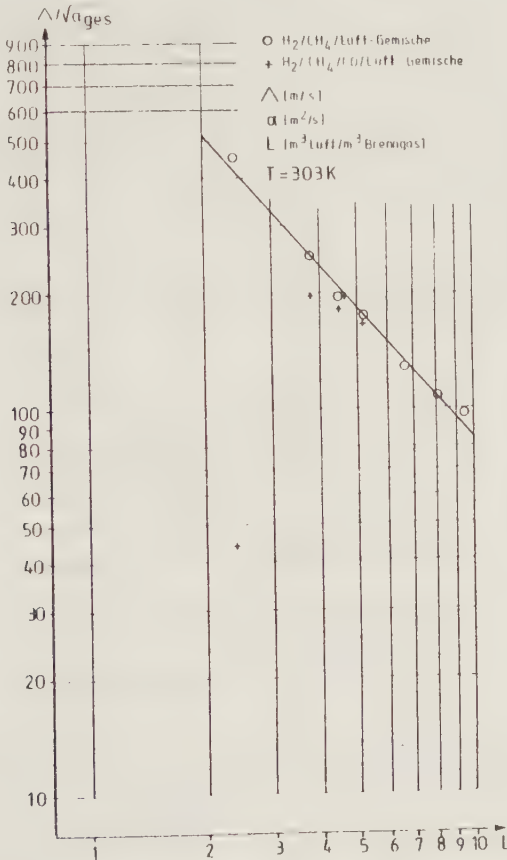


Abb. 5.29: Maximale Flammengeschwindigkeit im System $H_2/CH_4/CO$

In den Kurvenverlauf der Abbildung 5.29, der nur mit den Werten für $H_2/CH_4/Luft$ -Gemische gebildet wurde, können Gemische mit weniger als 20 Vol. % CO-Anteil gerade noch einbezogen werden.

Während sich die Gültigkeit der Gebert'schen Mischungsregel für Flammengeschwindigkeiten durch eigene Messungen also nicht bestätigen läßt, gelingt dies für die Brenngaskonzentrationen bei maximaler Flammengeschwindigkeit. Werden die Kehrwerte dieser Konzentrationen gegen den Luftbedarf aufgetragen, so ergibt sich in Abbildung 5.30 mit den Meßwerten aus Tabelle 5.1 eine Gerade. Ähnliche Beziehungen existieren zur Ermittlung von Explosionsgrenzen nach der Wärmetheorie von Khitrin /62/ bzw. der Regel von Le Chatelier /63/.

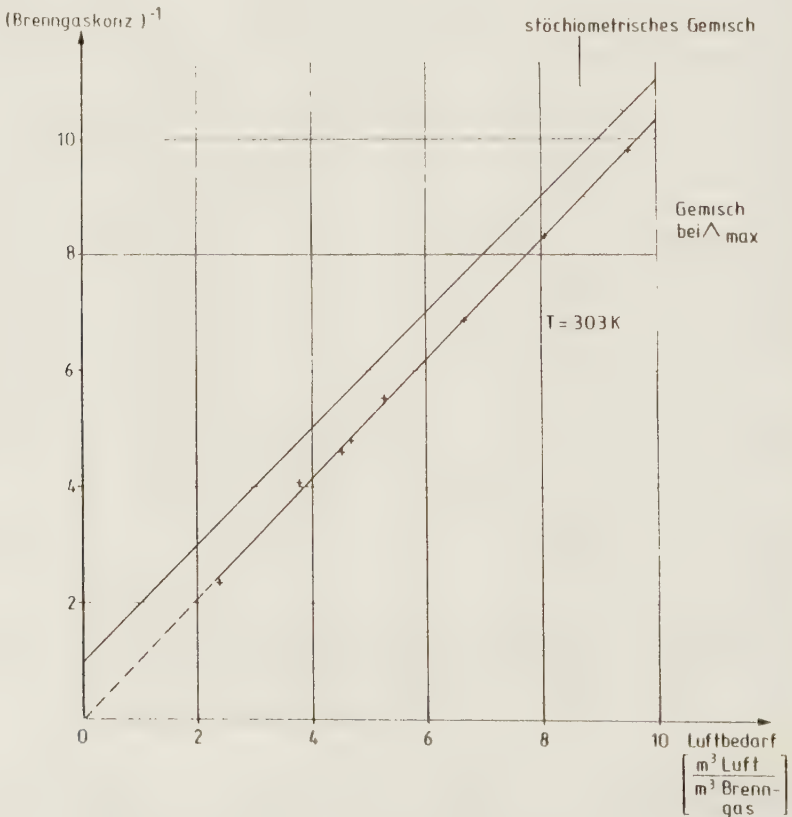


Abb. 5.30: Brenngaskonzentrationen bei maximaler Flammengeschwindigkeit und bei stöchiometrischer Zusammensetzung

In Abbildung 5.30 wird außerdem deutlich, daß Brenngaskonzentrationen bei maximaler Flammengeschwindigkeit immer höher als Konzentrationen für die stöchiometrische Zusammensetzung sind.

5.7.3 Einfluß der Vorwärmtemperatur

Die Zunahme der Flammengeschwindigkeit Λ mit steigender Vorwärmtemperatur T_0 wurde von verschiedenen Autoren behandelt /2/. Wie beim Einfluß der Brenngaszusammensetzung beschränkt man sich auch hier auf die maximalen Flammengeschwindigkeiten der einzelnen Brenngase.

Die Temperaturabhängigkeit wird von Kwiatkowski /56/ mit der empirischen Gleichung

$$\frac{\Lambda_{2,\max}}{\Lambda_{1,\max}} = \left(\frac{T_2}{T_1}\right)^l \quad (5.4)$$

beschrieben. Für Erdgas mit der Hauptkomponente Methan und vergleichsweise geringen Mengen Propan und Stickstoff wird ein Wert von $l = 1.73$ angegeben. Die Werte für Wasserstoff/Luft-Gemische liegen zwischen $l = 1.33$ /64/ und 1.41 /65/.

Eigene Messungen im System Methan/Luft ergeben einen Exponenten l ($l_{\text{CH}_4} = 1.74$), der auch für andere Methankonzentrationen zwischen 9 und 13 Vol % gültig ist. Dadurch kann der Vorfaktor z des Exponentialansatzes in Gleichung (5.1) durch den temperaturabhängigen Ausdruck $z' \cdot T^l$ (T in K; $z'_{\text{CH}_4} = 1.341 \cdot 10^{27} \text{ m/s}$) ersetzt werden. Man erhält dann die empirische Bestimmungsgleichung

$$\Lambda = z' \cdot T^l \cdot x_B^m \cdot (1 - x_B)^n \quad (5.5)$$

In Abbildung 5.31 sind die auf diese Weise berechneten Flammgeschwindigkeitskurven von Methan/Luft-Gemischen mit den zugehörigen Meßwerten eingetragen.

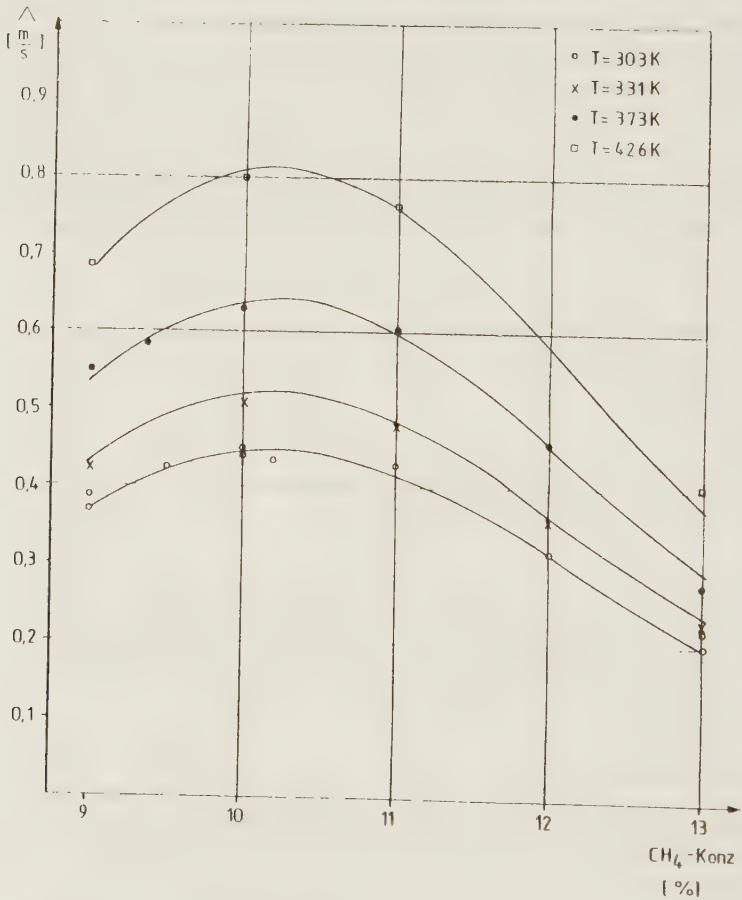


Abb. 5.31: Flammgeschwindigkeiten von CH_4 /Luft-Gemischen in Abhängigkeit von der Vorwärmtemperatur

Auch für Wasserstoff/Luft-Gemische wurden durch Regression die Werte für z' ($z'_{H_2} = 1.343 \cdot 10^{-2}$) und l ($l_{H_2} = 1.462$) ermittelt. Die Übereinstimmung mit den gemessenen Flammengeschwindigkeiten ist aber nicht so gut wie in Abbildung 5.31.

5.7.4 Einfluß von Inertgasen

Als Inertgase dürfen bei Flammenreaktionen strenggenommen nur Edelgase bezeichnet werden. Andere Stoffe, wie Wasserdampf oder Kohlendioxid, nehmen dagegen an der Reaktion teil, und auch Stickstoff ist durch den Zeldovich-Mechanismus /66/ an der Gesamtreaktion beteiligt /28, 67-70/. Wenn diese drei genannten Stoffe in diesem Kapitel trotzdem zu den Inertgasen gerechnet werden, dann geschieht dies deshalb, weil man durch deren gezielten Zusatz die Flammenreaktion verlangsamen kann und diese Wirkung zu einem nicht unerheblichen Teil auf andere Effekte zurückzuführen ist.

Inertgase können theoretisch also in verschiedener Weise wirksam sein, z.B. durch

- Einfluß auf Gleichgewichtsreaktionen;
- Verdünnung, d.h. Konzentrationsminderung anderer an der Reaktion beteiligter Stoffe;
- Änderung der Stoffgrößen (z.B. Temperaturleitzahl und Diffusionskoeffizienten).

Dennoch kann in der Praxis der Einfluß solcher "Inertgase" durch relativ einfache, empirische Beziehungen beschrieben werden, nach denen die Flammengeschwindigkeit mit steigendem Inertgasanteil linear abnimmt /71,72/.

Keunen /71/ stellt zusätzlich eine Verbindung zu den Explosionsgrenzen inertgashaltiger Gasgemische her:

$$\Lambda_{\max} = \Lambda_{\max}^0 \prod_I \frac{x_I^e - x_I}{x_I^e} \quad (5.6)$$

Λ^0 : Flammengeschwindigkeit ohne Zusatz von Inertgasen

x_I : Inertgasanteil

x_I^e : Inertgasanteil, bei dem obere und untere Explosionsgrenze zusammenfallen, das Brenngas also in keinem Mischungsverhältnis mit Luft mehr zündfähig ist.

Gibt man ein bestimmtes Brenngas/Luft-Verhältnis vor und ersetzt x_I^e in Gleichung (5.6) durch den Inertgasanteil, bei dem dieses Brenngas/Luft-Gemisch gerade nicht mehr zündfähig ist, so könnte die in dieser Weise modifizierte Gleichung auch für nicht-maximale Flammengeschwindigkeiten gelten.

Die Abb. 5.32 bis 5.34 zeigen eigene Meßwerte zum Einfluß von N_2 , CO_2 und H_2O -Dampf in CH_4 /Luft- bzw. H_2 /Luft-Flammen bei mehreren Brenngas/Luft-Gemischen.

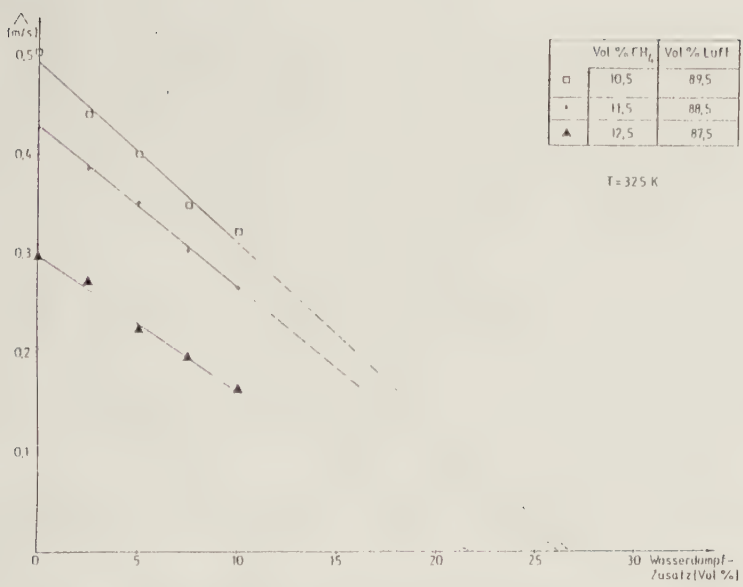


Abb. 5.32: Einfluß von H_2O auf die Flammengeschwindigkeiten von CH_4/Luft -Flammen

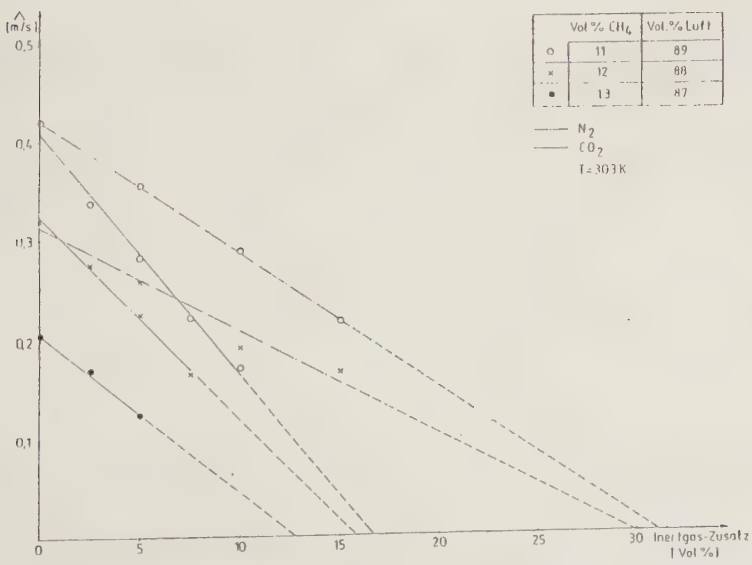


Abb. 5.33: Einfluß von N_2 und CO_2 auf die Flammengeschwindigkeiten von CH_4/Luft -Flammen

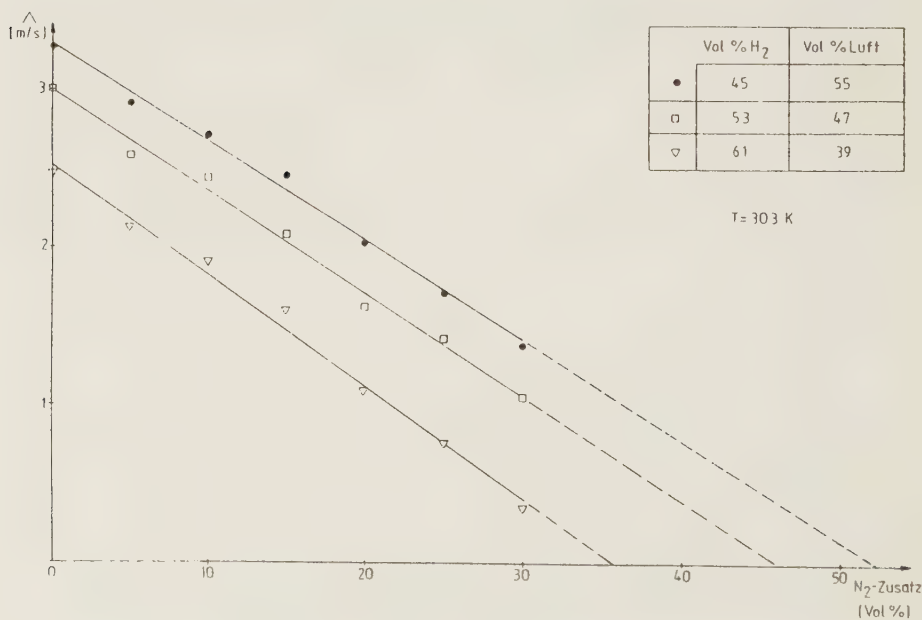
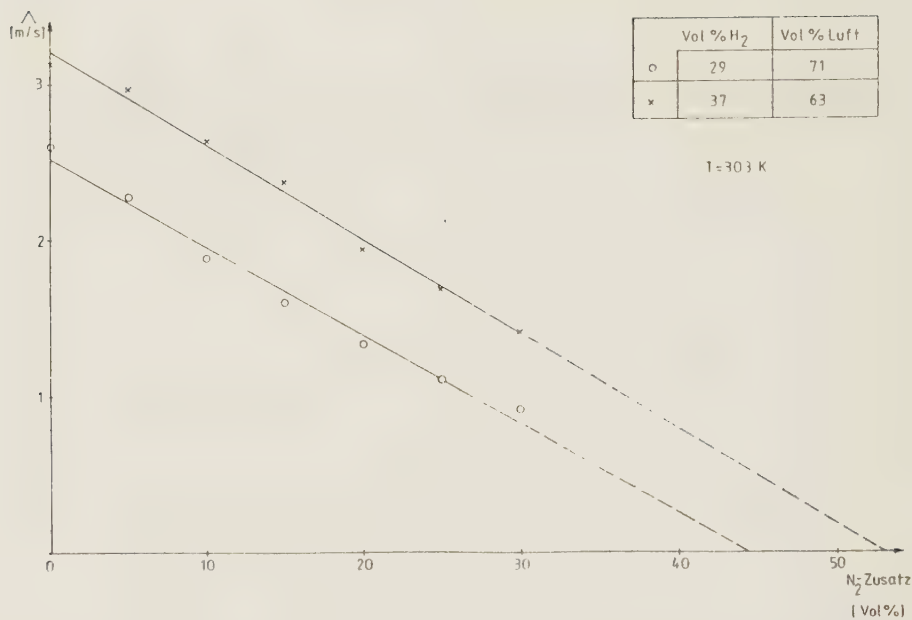


Abb. 5.34: Einfluß von N₂ auf die Flammengeschwindigkeiten von H₂/Luft-Flammen

Die Meßergebnisse scheinen die Struktur der Gleichung (5.6) zu bestätigen. Aus Abb. 5.33 würde sich demnach ein N_2 -Anteil von ca. 31 Vol.% ergeben, bei dem das zuvor "zündwilligste" CH_4 /Luft-Gemisch nicht mehr zündfähig ist bzw. die CH_4 /Luft-Flamme nicht mehr fortschreitet ($\Lambda = 0$). Nach Keunen /71/ müßte dieser Wert bei $x_I^e = 34.5$ Vol.% N_2 liegen. Die Ursache dieser Differenz könnte u.a. auch in der Methode zur Explosionsgrenzenbestimmung liegen, bei der bekanntlich mehrere Einflußgrößen zu berücksichtigen sind /73-76/. Bei den anderen gemessenen Systemen liegen die extrapolierten Werte x_I^e allerdings z. T. erheblich unter den von Keunen angegebenen (CH_4/CO_2 /Luft: $x_I^e = 24.0$; H_2/N_2 /Luft: $x_I^e = 71.5$).

Den Abb. 5.32 bis 5.34 läßt sich weiterhin entnehmen, daß der durch Extrapolation ermittelte Wert für x_I^e um so mehr abnimmt, je weiter sich das Mischungsverhältnis Brenngas/Luft von dem bei maximaler Flammengeschwindigkeit entfernt. Diese Tatsache würde, immer noch die Gültigkeit der modifizierten Gleichung (5.6) vorausgesetzt, mit Untersuchungen an verschiedenen Brenngas/Inertgas/Luft- bzw. -/Sauerstoff-Gemischen übereinstimmen /77,78/.

Wenn es also gelingt, einen eindeutigen Zusammenhang zwischen den hier extrapolierten und den in einem Explosionsautoklaven gemessenen Werten für x_I^e herzustellen, können viele Erkenntnisse auf dem Gebiet der Explosionsgrenzen in die Flammengeschwindigkeitsmessung eingebracht werden. -

6. ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Ziel der vorliegenden Arbeit war die Bestimmung laminarer Flammenfrontgeschwindigkeiten in Prozeßgasen von Kohlevergasungsanlagen. Die Prozeßgase enthalten die Brenngaskomponenten Methan, Kohlenmonoxid, Wasserstoff und Ethan und die Inertgaskomponenten Kohlendioxid, Stickstoff und Wasserdampf.

Wegen der Komplexität der in einer Flamme ablaufenden chemischen Reaktionen können mit der Theorie, d.h. mit Kenntnissen aus der Reaktionskinetik, heute nur einzelne Flammen ausgewählter Brenngas/Luft-Gemische berechnet werden. Dagegen müssen Flammengeschwindigkeiten polynärer Gemische experimentell bestimmt werden.

Dazu wurde eine Apparatur aufgebaut, mit der es möglich ist, den ganzen Bereich aller vorkommenden Prozeßgase in ihren Mischungen mit Luft zu untersuchen.

Nach der sogenannten Düsenbrennermethode wurden stationäre, laminare Vormischflammen erzeugt und aus der Strömungsgeschwindigkeit des unverbrannten Gases und der Lage der Reaktionszone die Flammenfrontgeschwindigkeit errechnet.

Die Frischgasgeschwindigkeit wurde durch Laser-Doppler-Anemometrie ermittelt, einem berührungslosen Meßverfahren, das für Geschwindigkeitsmessungen in sehr kleinen Volumina geeignet ist. Dadurch konnte die lokale Geschwindigkeitsverteilung bis unmittelbar vor die Brennfläche hin mit ausreichender Genauigkeit aufgelöst werden.

Die Lage der Reaktionszone wurde mittels Schlierenphotographie bestimmt. Bei diesem ebenfalls berührungslosen Meßverfahren wird diese Zone auf die Ebene projiziert, ohne daß die räumliche Ausdehnung der Flamme berücksichtigt werden muß.

Vorversuche an verschiedenen Flammen ergaben, daß die Voraussetzungen für die Anwendung der Düsenbrennarmethode erfüllt waren, d.h. eine spezielle Strömungskonfiguration und eine kegelförmige Form der Reaktionszone. Die Vorversuche ergaben aber auch, daß für die Versuchsdurchführung eine bestimmte Vorgehensweise erforderlich ist, um reproduzierbare Meßwerte zu erhalten.

In weiteren, umfangreichen Versuchsreihen wurden die Flammgeschwindigkeiten von Prozeßgas/Luft-Gemischen im Sinn der Aufgabenstellung gemessen. Bei Methan/Luft- und Wasserstoff/Luft-Gemischen stimmen die Meßwerte mit anderweitig veröffentlichten Ergebnissen überein.

Ferner wurde untersucht, ob sich empirische Beziehungen, wie sie in der Literatur zu finden sind, auf die eigenen Meßergebnisse anwenden lassen. Für den Einfluß der Brenngaszusammensetzung im System Methan/Wasserstoff/Kohlenmonoxid wurden keine Beziehungen gefunden, mit denen man Interpolationen hätte hinreichend sicher vornehmen können. Dagegen konnten empirische Gleichungen, die den Einfluß der Vorwärmtemperatur und des Inertgasanteils beschreiben, in eingeschränkten Bereichen bestätigt werden.

Im Zuge der vorliegenden Untersuchungen wurden wiederholt Zusammenhänge zwischen verschiedenen sicherheitstechnischen Kenngrößen hergestellt. Diese Zusammenhänge gewinnen an Bedeutung, wenn moderne Meßverfahren entwickelt werden, die sehr genaue Informationen, z.B. über Temperatur- und Konzentrationsprofile in stationären Flammen, liefern können. Die Übertragung dieser Ergebnisse auf das Gebiet der Sicherheitstechnik wird noch eine wichtige Aufgabe sein.

Diese Arbeit wurde von der Firma Interatom mit Sach- und Personalmitteln gefördert.

7. SYMBOLVERZEICHNIS

7.1 Lateinische Buchstaben

A	Flächenverhältnis	-
a	Temperaturleitzahl	$\frac{\text{m}^2}{\text{s}}$
b	Exponent	-
c	Konzentration	$\frac{\text{mol}}{\text{m}^3}$
C	Kalibrierfaktor	$\frac{\text{MHz}}{\text{m/s}}$
c_p	spez. Wärmekapazität	$\frac{\text{J}}{\text{g K}}$
D	Diffusionskoeffizient	$\frac{\text{m}^2}{\text{s}}$
d	Durchmesser	m
E	Aktivierungsenergie	$\frac{\text{J}}{\text{mol}}$
f	Brennweite	m
f_D	Dopplerfrequenz	$\frac{1}{\text{s}}$
G	Massenanteil	-
g	Diffusionsstrom	$\frac{\text{g}}{\text{s m}^2}$
H	Enthalpie	$\frac{\text{J}}{\text{g}}$
j	Massenstromdichte	$\frac{\text{g}}{\text{m}^2 \text{ s}}$
k	Stoßfaktor	mol, s

L	Luftbedarf	-
Le	Lewis-Zahl	-
l, m, n	Exponenten	-
M	Molekulargewicht	$\frac{g}{mol}$
p	Druck	$\frac{N}{m^2}$
Pe	Peclet-Zahl	-
q	Wärmestromdichte	$\frac{J}{m^2 \cdot s}$
R	Gaskonstante	$\frac{J}{mol \cdot K}$
r	Reaktionsgeschwindigkeit	$\frac{mol}{m^3 \cdot s}$
r'	massenbezogene Reaktionsgeschwindigkeit	$\frac{g}{m^2 \cdot s}$
s	Löschabstand	m
T	Temperatur	K
T _i	Zündtemperatur	K
t	Zeit	s
v	Geschwindigkeit	$\frac{m}{s}$
v _D	Diffusionsgeschwindigkeit	$\frac{m}{s}$
W	Mindestzündenergie	J
w	Massenanteil	-

x	Ortskoordinate	m
x_i	Mol-, Volumenanteil	-
z, z'	Exponenten	-

7.2 Griechische Buchstaben

α	Exponent	-
β	Vorfaktor	mol, s, K
δ	Schichtdicke	m
η	Dicke der Reaktionszone	m
λ	Wärmeleitfähigkeit	$\frac{J}{m \cdot s \cdot K}$
λ	Wellenlänge	m
Λ	Flammengeschwindigkeit	$\frac{m}{s}$
ψ	Stromfunktion	$\frac{g}{m^2}$
ρ	Dichte	$\frac{g}{m^3}$
ϕ	Kegelöffnungswinkel	-
θ	Schnittwinkel der Laserstrahlen	-

7.3 Indices

O	Anfang	i	Komponente
E	Ende	B	Brenngas

8. LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ Fa. Interatom: PNP-Leitblatt Nr. 7.007.11 (1979).
- /2/ P. Batheja: "Ermittlung von Zündgrenzen der Prozeßgase von Kohlevergasungsanlagen, Literaturstudium sowie Definition und Planung einer Versuchsanlage", PNP Sicherheitssofortprogramm, Vorhaben 3.3, Teilaufgabe 2.2.1.
- /3/ C. Franze, H.G. Wagner: "Ausbreitung laminarer Flammen in vorgemischten Gasen", Z. Elektrochem. 60 (1956) 6.
- /4/ E. Hoffmann-Berling: "Experimentelle Untersuchungen zur Reaktionsstruktur in gefalteten Vormischflammenfronten", Diss. Karlsruhe (1982).
- /5/ R.M. Fristrom, A.A. Westenberg: "Flame structure", McGraw-Hill (1965).
- /6/ H. Schneider, H. Pfortner: "Flammen und Druckwellenausbreitung bei der Deflagration von Wasserstoff/Luft-Gemischen II", Fraunhofer-Institut für Treib- und Explosivstoffe, Pfinztal (1981).
- /7/ H. Förster, T. Redeker: PNP-Sicherheitssofortprogramm V 3.3 -Teilaufgabe 3.2, Schlußbericht für Phase II, PTB Braunschweig (1982).
- /8/ E. Mayer: "A theory of flame propagation limits due to heat loss", Comb. and flame (1957) 1.
- /9/ B. Lewis, G. v. Elbe: "Determination of the speed of flames and the temperature distribution in a spherical bomb from time-pressure explosion records", Journ. of chem. Phys. (1934) 2.

- /10/ J.O. Hirschfelder: "Some remarks on the theory of flame propagation", 9. Symp. on Combustion (1962).
- /11/ Hirschfelder, Curtiss: "Theory of propagation of flame, part I, general equitations", 3. Symp. on Combustion (1948).
- /12/ R. Lindow: "Zur Bestimmung der laminaren Flammengeschwindigkeit", Diss. Karlsruhe (1966).
- /13/ W. Nusselt, Z. Ver. dtsch. Ing. (1915) 59.
- /14/ F. Schultz-Grunow: "Ähnlichkeitsgesetz der Flammenfortpflanzung", Z. phys. Chem. 201 (1952).
- /15/ E. Bartholomé, C. Hermann: "Zur Wärmetheorie der Flammengeschwindigkeit", Z. f. Elektrochemie 54 (1950) 3.
- /16/ E. Bartholomé, H.J. Dreyer, K.J. Lesemann: "Bestimmung der Flammengeschwindigkeit einer Wärme Flamme durch Lösen eines Eigenwertproblems mit der Integrieranlage IBM-Ott", Z. f. Elektrochemie 54 (1950) 4.
- /17/ T. v. Kármán: "Structure and propagation of laminar flames", 6. Symp. on Combustion (1956).
- /18/ Kármán, Penner: "Fundamental approach to laminar flame propagation", Selected combustion problems, north atlantic treaty organization 1 (1953/54).
- /19/ K. Bechert: "Zur Theorie der Verbrennungsgeschwindigkeit II, Reaktion zwischen ungleichen Teilchen, Kohlenwasserstoffverbrennung", Ann. d. Physik 5 (1950).

- /20/ K. Bechert: "Zur Theorie der Verbrennungsgeschwindigkeit mit einer Anwendung auf die Ozonverbrennung", Ann. d. Physik 4 (1949) 5.
- /21/ N. Semenov: "Thermal theory of combustion and explosion III, theory of normal flame propagation", NACA Techn. Mem. Nr. 1026 (1948).
- /22/ K.H. Hofmann: "Experimentelle Bestimmung der adiabaten Flammentemperatur in Explosionsflammen nahe der unteren Zündgrenze", Diss. Erlangen (1981).
- /23/ L.W. Hillen: "The calculation of flame temperatures at constant pressure and constant volume", Aeronautical Research Labor., Melbourne, Mechanical Eng. Note 341 (1973).
- /24/ W. Jost, L. v. Müffling:, Z. phys. Chem. A 181 (1938).
- /25/ C. Tanford, R.N. Pease: "Theory of burning velocity II, the square root law for burning velocity", Journ. of chem. Phys. (1947) 15.
- /26/ B. Lewis, G. v. Elbe: "On the theory of flame propagation", Journ. of chem. Phys. (1934) 2.
- /27/ Th. Just: "Moderne Entwicklungen bei der Untersuchung von Verbrennungsvorgängen", Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 87 (1983) 11.
- /28/ J. Warnatz: "Hydrocarbon oxidation at high temperatures", Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 87 (1983) 11.

- /29/ J.P. Botha, D.B. Spalding: "The laminar flame speed of propane/air mixtures with heat extraction from the flame", Proc. of the Royal Soc. A 225 (1954).
- /30/ A. Egerton, S.K. Thabet: "Flame propagation: The measurement of burning velocities of slow flames and the determination of limits of combustion", Proc. of the Royal Soc. A 211 (1952).
- /31/ G.N. Badami, A. Egerton: "The determination of burning velocities of slow flames", Proc. of the Royal Soc. A 228 (1955)
- /32/ G. Tsatsaronis: "Prediction of propagation laminar flames in methane, oxygen, nitrogen mixtures", Comb. and flame (1978) 33.
- /33/ H.A. Dwyer, B.R. Sanders, F. Raiszadek: "Ignition and flame propagation studies with adaptive numerical grids", Comb. and flame (1983) 5.
- /34/ N. Peters, J. Warnatz: "Numerical methods in laminar flame propagation", Notes on numerical fluid mechanics Vol. 6, Vieweg (1982).
- /35/ J. Warnatz, 18. Symp. on Combustion (1981).
- /36/ K.H. Ebert, P. Deuflhard, W. Jäger: "Modelling of chemical reaction systems", Springer (1981).
- /37/ Fa. Brooks, Frankfurt: Einbau- und Betriebsanleitung thermischer Massendurchflußmesser (1981).
- /38/ Fa. Brooks, Frankfurt: Mündliche Mitteilung (1982).

- /39/ Unveröff. Betriebsanleitung des Gasdurchfluß-Meßgerätes, Institut für Techn. Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg.
- /40/ Fa. Braun, Melsungen: Betriebsanweisung 1830/33-J.
- /41/ H. Mache, A. Hebra: "Zur Messung der Verbrennungsgeschwindigkeit explosiver Gasgemische", Akad. der Wissenschaften Wien, Sitzungsber. Mathem.-Naturw. Klasse IIa, 130 (1941).
- /42/ A. Michalke: "Theoretische und experimentelle Untersuchung einer rotationssymmetrischen laminaren Düsegrenzschicht", Diss. Berlin (1961).
- /43/ C. Rückauer: "Laser-Doppler-Anemometer", messen + prüfen/automatik, (Okt. 1980).
- /44/ DISA-Instruction Manual 55 X Modular LDA Optics (1979).
- /45/ Spectra-Physics Instruction Manual Model 120 He-Ne Laser.
- /46/ Unfallverhütungsvorschrift "Laserstrahlen" (GUV 2.20).
- /47/ Fa. OEI, Karlsruhe: Betriebsanleitung für SPS 101.
- /48/ F. Henning: "Temperaturmessung", Springer (1977).
- /49/ Fa. Schrader, Wenden: Betriebsanleitung zum Differentialinterferometer SI.
- /50/ G. Schmidt: Unveröffentl. Betriebsanleitung "Flammenfront", Inst. f. Techn. Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg (1982).

- /51/ G. Schmidt: Schlußbericht 1980, PNP-Sicherheitssofortprogramm, Vorhaben 3.3, Teilaufgabe 2.2 (1981).
- /52/ G.E. Andrews, D. Bradley: "Determination of burning velocity by double ignition in a closed vessel", Comb. and flame (1973) 20.
- /53/ R. Broucek: Unveröffentl. Beschreibung des Rechnerprogramms "POLYPG", Inst. f. Techn. Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg.
- /54/ Forschungsantrag zum PNP-Sicherheitssofortprogramm, Vorhaben 3.3, Teilaufgabe 2.2, Inst. f. Techn. Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg (1978).
- /55/ Fa. Interatom: Notiz Nr. 73.1175.6 (1977).
- /56/ K. v. Kwiatkowski: "Temperaturabhängigkeit der Flammgeschwindigkeit von Erdgas/Luft-Gemischen", gwf 108 (1967) 31.
- /57/ VDI-Wärmeatlas, 3. Auflage (1977).
- /58/ D'Ans-Lax: "Taschenbuch für Chemiker und Physiker", Springer (1970).
- /59/ W. Leibrock: "Erdgas: Kennzahlen, Verbrennungskontrolle", Wärme 85 (1979) 2.
- /60/ F. Gebert: "Über Flammengeschwindigkeiten von Gasgemischen", Brennstoffchemie 43 (1962) 10.
- /61/ F. Gebert: "Zündgrenzen von Gasgemischen", Brennstoffchemie 43 (1962) 7.

- /62/ F.-R. Kappler: "Explosionstheorie und Funkenzündung sowie experimentelle Bestimmung der Zündgrenzen von Olefin/Sauerstoff/Stickstoff-Gemischen in Abhängigkeit von der Temperatur", Diss. Erlangen (1974).
- /63/ Le Chatelier: Ann. Min. 19 (1891) 8.
- /64/ J.L. Drell, F.E. Belles: "Survey of H₂-combustion properties", NACA Report 1383 (1958).
- /65/ S. Heimel: "Effect of initial mixture-temperature on burning velocity of hydrogen-air mixtures with preheating and simulated preburning", NACA Technical Note 4156 (1957).
- /66/ J. Zeldowich: "The oxidation of nitrogen in combustion and explosions", Acta Physicochimica U.R.S.S. 21 (1946) 4.
- /67/ R.F. Sawyer: "Reduction of pollutant formation in combustion processes", Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 87 (1983) 11.
- /68/ K.H. Homann, J. Warnatz, C. Wellmann: 11. Symp. on Combustion (1967).
- /69/ Th. T. A. Paauw, D.J. Heidweiller, C.W.J. van Koppen: "Die Bildung von Stickstoffoxiden bei industriellen Erdgasverbrennungsprozessen", VDI-Berichte Nr. 346 (1979).
- /70/ W. Leuckel, R. Römer: "Schadstoffe aus Verbrennungsprozessen", VDI-Berichte Nr. 346 (1979).
- /71/ J. Keunen: "Über den Einfluß der Inerten auf Zünd- und Verbrennungseigenschaften von Gasen", Gaswärme 9 (1960) 4.

- /72/ T.G. Scholte, P.B. Vaags: "The burning velocity of hydrogen-air mixtures and mixtures of some hydrocarbons with air", Comb. and flame (1959) 3.
- /73/ H. Christner: "Experimentelle und theoretische Bestimmung der Druck- und Temperaturabhängigkeit von Zündgrenzen, dargestellt am Beispiel von Alkohol/Luft-Gemischen", Diss. Erlangen (1974).
- /74/ R. Müller: "Einfluß der Zündenergie auf die Zündgrenzen von Gas/Luft-Gemischen unter Variation von Druck und Temperatur", Diss. Erlangen (1977).
- /75/ M.G. Zabetakis: "Flammability characteristics of combustible gases and vapors", US Bureau of Mines, Bulletin Nr. 627 (1965).
- /76/ K. Nabert, G. Schön: "Sicherheitstechnische Kennzahlen brennbarer Gase und Dämpfe", Deutscher Eichverlag (1963).
- /77/ K. v. Kwiatkowski: "Untersuchungen über die Zündbarkeit von Brenngasen in Bezug auf ihre Sicherheit", Gas, Wärme, International 16 (1967) 1, 2, 3.
- /78/ S. Amon: "Einfluß von Inhibitoren und Promotoren auf die Explosionsgrenzen und Flammenfrontgeschwindigkeiten von Brenngas/Luft-Gemischen", Diplomarbeit, Inst. f. Techn. Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg (1982).

L E B E N S L A U F

Gerhard S C H M I D T

20.02.1951	geboren in Nürnberg
	Vater: Rolf Schmidt, Dipl.-Ing.
	Mutter: Margarete Schmidt, geb. Leilich
1957 - 1961	Volksschule Nürnberg
1961 - 1970	Melanchthon-Gymnasium, Nürnberg
	Abschluß: Abitur
1970 - 1971	Wehrdienst
1971 - 1977	Studium des Chemie-Ingenieur-Wesens an der Universität Erlangen-Nürnberg
	Abschluß: Diplom
1977 - 1979	Verfahrensingenieur bei der Fa. BASF, Ludwigshafen
1979 - 1984	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Technische Chemie I der Universität Erlangen- Nürnberg
seit 01.09.84	Verfahrensingenieur bei der Fa. GfE, Nürnberg

Diese Arbeit wurde am Institut für Technische Chemie I der Universität Erlangen-Nürnberg im Rahmen des PNP-Sicherheitssofortprogrammes durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. H. Hofmann danke ich sehr herzlich für das Thema dieser Arbeit, für die fachliche Unterstützung und für die ständige Diskussionsbereitschaft. Herrn Prof. Dr. S. Peter gilt mein Dank für die Übernahme des Koreferates.

Der Fa. Interatom danke ich für die Bereitstellung von Personal- und Sachmitteln.

Besonders danken möchte ich auch Herrn Dr. K.H. Hofmann für die organisatorische Vorarbeit, Herrn P. Widlok für die Beratung bei photographischen Problemen, der Institutswerkstatt für die Mithilfe beim Versuchsaufbau, Frau. R. Dommer für das Anfertigen der Zeichnungen und Frl. M. Laternik und Frl. A. Messner für die maschinengeschriebene Fassung dieser Arbeit.

Allen Mitarbeitern des Instituts gilt mein Dank für die fachliche, aber auch nicht-fachliche Unterstützung während meiner Tätigkeit in Erlangen.

